

# 修 士 論 文 の 和 文 要 旨

研究科・専攻	大学院 情報理工 学研究科 先進理工学 専攻 博士前期課程		
氏 名	渡邊 直登	学籍番号	1233096
論 文 題 目	電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光の開発		

## 要 旨

光周波数コムとは高精度な光周波数が正確に一定間隔で並んでいるレーザーであり、任意の光周波数を高精度に測定するための道具として開発されてきた。近年、この光周波数コムを直接分光光源として用いることで、広帯域な吸収スペクトルを高分解能、高精度かつ高感度に測定可能となるダイレクト光周波数コム分光計の研究が盛んに行われている。この方法は、複数の微量な分子を短時間に同定する事が可能で、呼気分析などの微量分子測定に応用が考えられている。

我々は、このダイレクト光周波数コム分光計の一種で2台の繰り返し周波数が異なる光周波数コムを用いてフーリエ分光を行うデュアルコム分光の研究を行った。この方法は、従来のマイケルソン型フーリエ分光器と異なり可動鏡を用いない分光法なので短時間測定が可能である。またこの方法では、今までモードロックレーザーを用いて実現されてきたが、より高感度に測定を行うためには2台のコムの高精度な位相同期が必要となる。

そこで、我々は電気光学変調器型光周波数コムを用いることで、2台のコムの高精度な位相同期を不要とし、より簡便で実用的なデュアルコム分光法の提案と実証を行った。この方法を実証するための実験で、初めビート信号の振幅が大きく揺らぐという問題が発生した。これは、2台のコムに光路長の揺らぎに起因することが分かった。この問題を解決するために、回折格子を用いて揺らぎを抑え図1のような光学系でアセチレン分子の吸収スペクトルを測定した。また、この方法とは別に光路長を安定化することで揺らぎを抑える方法も新たに提案し、その実証も行った。

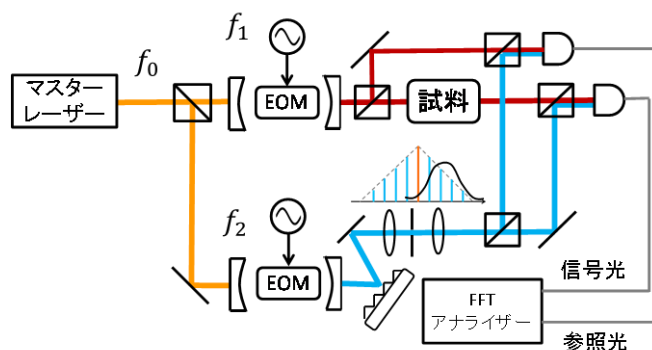


図1 電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光

平成25年度修士論文

電気光学変調器型光周波数コムを用いた  
デュアルコム分光の開発

学 籍 番 号 1233096

氏 名 渡邊 直登

先進理工学専攻 応用物理工学コース

主任指導教員 中川 賢一 教授

指導教員 向山 敬 特任准教授

提出日 平成26年2月28日



# 目次

<b>第1章</b>	<b>序論</b>	<b>1</b>
1.1	研究背景	1
1.2	本研究の目的	2
<b>第2章</b>	<b>光周波数コム</b>	<b>3</b>
2.1	光周波数コム	3
2.1.1	モードロックレーザー	5
2.2	電気光学変調器型光周波数コム	8
2.2.1	電気光学変調器	8
2.2.2	電気光学変調器型光周波数コム	12
<b>第3章</b>	<b>デュアルコム分光法</b>	<b>17</b>
3.1	フーリエ分光法	17
3.2	デュアルコム分光法	20
<b>第4章</b>	<b>電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法</b>	<b>26</b>
4.1	電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法の概要	26
4.1.1	構成について	28
4.2	ビート信号の振幅揺らぎ	30
4.2.1	ビート信号の振幅揺らぎの原因	32
4.2.2	ビート信号の振幅揺らぎの低減	34
4.3	アセチレン分子の吸収スペクトルの観測	36
4.3.1	積算による感度向上	38
4.4	光路長安定化によるビート信号の振幅揺らぎの低減	44
4.4.1	光路長安定化の原理	44
4.4.2	光路長安定化の実験系	46
4.4.3	光路長安定化の実験結果	48
4.4.4	高次モードのビート信号振幅の増加の原因	50

## II

### 第5章 まとめと今後の予定

54

# 目 次

2.1	光周波数コム of 周波数スペクトル . . . . .	3
2.2	光周波数コム of 時間応答 . . . . .	4
2.3	モードロックされている時の光強度の理論曲線 . . . . .	6
2.4	自己モードロックの構成図 . . . . .	7
2.5	可飽和吸収体の光透過特性 . . . . .	7
2.6	可飽和吸収体によるパルス圧縮 . . . . .	8
2.7	電気光学変調器型光周波数コム . . . . .	12
2.8	電気光学変調器型光周波数コム of 動作 . . . . .	14
2.9	電気光学変調器型光周波数コム of スペクトル . . . . .	16
3.1	マイケルソン干渉計 . . . . .	17
3.2	インターフェログラム . . . . .	18
3.3	デュアルコム分光法の構成図 . . . . .	20
3.4	デュアルコム分光 of スペクトル . . . . .	21
3.5	$N\Delta f_r = f_{r,1}/2$ 時の折り返し . . . . .	22
3.6	ビート周波数領域での重複 . . . . .	22
3.7	デュアルコム分光 of 時間応答 . . . . .	23
3.8	$\delta f_{r,width} \ll \Delta f_r$ 時のビート信号 . . . . .	25
3.9	$\delta f_{r,width} > \Delta f_r$ 時のビート信号 . . . . .	25
4.1	EOM 型コムを用いたデュアルコム分光法の概略図 . . . . .	26
4.2	吸収線の線幅と繰返し周波数の関係 . . . . .	28
4.3	EOM 型コムを用いたデュアルコム分光法の構成図 . . . . .	28
4.4	電気光学変調器型光周波数コム of スペクトル . . . . .	29
4.5	アセチレン ( $^{12}\text{C}_2\text{H}_2$ ) の $1.5\ \mu\text{m}$ 帯吸収スペクトル [41] . . . . .	29
4.6	ガラスセル . . . . .	30
4.7	ビート信号 of スペクトル . . . . .	31
4.8	ビート信号 of 振幅の時間変化 . . . . .	31

## IV

4.9 EOM型コムを用いたデュアルコム分光法はマッハツェンダー干渉計に類似	32
4.10 2つのビート信号間の干渉	34
4.11 ビート信号の振幅揺らぎの低減方法	35
4.12 振幅揺らぎを低減した時のビート信号	35
4.13 吸収スペクトルを測定するための構成図	36
4.14 アセチレン分子の吸収スペクトル	36
4.15 マスターレーザー掃引時の吸収スペクトル	37
4.16 マスターレーザーを掃引したときの各吸収線のスペクトル	37
4.17 積算による感度向上の構成図	38
4.18 インターフェログラム	39
4.19 アセチレン分子の吸収スペクトル (測定時間: 0.01 ms)	39
4.20 相対線幅 (モード次数:10 番目、分解能:100 Hz)	40
4.21 積算時間を増加させた時の標準偏差/平均値の変化	40
4.22 モード次数 19 番目の積算時間を増加させた時の標準偏差/平均値の変化	41
4.23 積算前後のインターフェログラム (積算前:0.01 ms、積算後:12 ms)	41
4.24 積算後のアセチレン分子の吸収スペクトル (測定時間: 12 ms)	42
4.25 マスターレーザー掃引時の吸収スペクトル (積算時間:12 ms)	43
4.26 光路長安定化時のビート信号スペクトル	44
4.27 光路長安定化時のビート信号の時間応答	45
4.28 光路長安定化のための実験系	46
4.29 $\Delta\varphi_0$ の理想的な誤差信号	47
4.30 光路長制御のための光学系	47
4.31 フィードバック回路	47
4.32 誤差信号	48
4.33 光路長安定化前後のビート信号スペクトル	49
4.34 同期時/フリーラン時のビート信号スペクトル	50
4.35 共振器内の EOM の時間遅延	50
4.36 吸収の有無によるビート信号の振幅の変化の理論計算	52
4.37 共鳴点や変調指数の変化による振幅の変化の理論計算	53

# 第1章 序論

光周波数コムはレーザー周波数の絶対値を正確に測定するための道具として発展してきた。近年、この光周波数コムを直接分光光源として利用することで、広帯域の吸収スペクトルを高分解能かつ高精度に分光測定が可能となるダイレクト光周波数コム分光法の研究が行われている。

この章ではまず初めに光周波数コムとダイレクト光周波数コム分光法の歴史的な背景を簡単に紹介し、次に今回私が研究を行った電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法の目的について述べる。そして最後に、本論文の構成について簡単に説明する。

## 1.1 研究背景

光周波数コムは周波数軸上に等間隔に並んだモードからなる櫛（コム）型のスペクトルを持つ光信号である。これの発生方法にはいくつかあり、電気光学変調器を光共振器中に入れることで変調を深くしサイドバンドを発生する方法（光周波数コム発生器または電気光学変調器型光周波数コム）[1–3]とモードロックレーザーの周波数安定化による方法[4–6]がある。また近年では、マイクロ共振器を用いて発生する方法[7]やパラ水素のラマンサイドバンド発生による方法（ラマン型光周波数コム）[8,9]も提案されている。この中で現在、光周波数コムの発生方法として最も一般的な方法として使われているのがモードロックレーザーを用いる方法である。これは、モードロックレーザーとフォトニッククリスタルファイバーを組み合わせたことにより光を1オクターブ以上まで広げる事ができた事による。光をオクターブ以上広げると、光周波数コムのすべてのモードを光周波数コム自身で制御することができる。そのため、1台の光周波数コムでマイクロ波と光の周波数を結びつけることが可能となる。この一連の光周波数コム技術を含む、レーザーを使った精密分光の発展への貢献が認められ、2005年にJ. L. HallとT. W. Hänschにノーベル賞が贈られた。この光周波数コムは、光の絶対値測定に使われるだけでなく、2009年には長さの国家基準にもなっている[10]。

---



近年、光周波数コムの新たな応用として光周波数コム光源自身を分光光源に用いるダイレクト光周波数コム分光法が注目を浴びている。この方法の特徴として、広帯域な吸収スペクトルを高分解能、高精度、高感度に測定できるという利点がある。この方法には、一般的な分光法と同様に分散分光法とフーリエ分光法がある。分散分光法には、角度分散が大きい VIPA (Virtual Imaged Phased Array) [11–13] と回折格子を用いて 2 次元的にスペクトルを空間分解して CCD (Charge-Coupled Device) で測定する方法 [14, 15] がある。フーリエ分光法には、我々が研究を行っている方法でもあるデュアルコム分光法がある。この方法は 2002 年に S. Schiller によって提案 [16] され、2004 年に Keilmann らによって初めて原理実験 [17] が行われた。しかし、この原理実験では、2 台の光周波数コムの周波数を安定に制御できていなかったために、個々のモードを分割することができなかった。そこで、2008 年に I. Coddington らが 2 台の光周波数コムの周波数を高精度に制御することで、個々のモードが分割できる事を示した [18]。このデュアルコム分光は、分子分光 [19, 20]、絶対距離計 [21, 22]、空間イメージング [23] などの応用が提案されている [24]。

## 1.2 本研究の目的

デュアルコム分光法は、他の分光法と比較して高速に測定できることと測定波長領域に制限が少ないという利点を持っているが、より高感度に測定するためには 2 台の光周波数コムを高精度に位相同期しなければならない。これが、現在デュアルコム分光を複雑にしている一因となっている。この問題を解決するために、位相同期不要なデュアルコム分光法 [25] が提案されているが、この方法では 2 台の独立な CW レーザーが必要となり、装置全体が巨大になるという問題がある。

そこで我々は本研究で、従来のモードロックレーザーに代わって電気光学変調器型光周波数コムを用いて行う方法を提案する。この方法を用いると高精度な位相同期が不要となるため、より簡便でかつ実用的なデュアルコム分光法が実現できると考えている。本研究では、この方法の原理実験を行い、そこで生じた様々な問題点について調べた。

## 第2章 光周波数コム

本研究では、光周波数コムを直接分光光源として用いた分光法の一つである、デュアルコム分光法の研究を行った。そこで本章では、分光光源である光周波数コムについて説明する。まず初めに、光周波数コムの概要 [26] について述べ、次に一般的な光周波数コムの発生源であるモードロックレーザー [26–29] について簡単に紹介する。最後に本研究で用いた光源である、電気光学変調器 (Electro-Optic Modulator:EOM) 型光周波数コムの原理 [30] について説明する。

### 2.1 光周波数コム

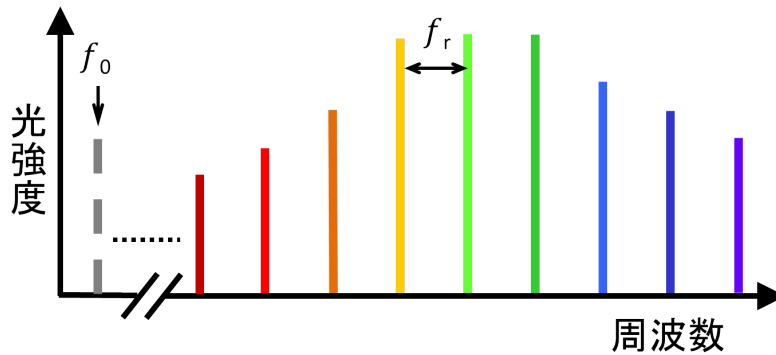


図 2.1 光周波数コムの周波数スペクトル

光周波数コムとは、図 2.1 に示したような周波数軸上に等間隔に並んだ縦モードからなる櫛（コム）形のスペクトルを持つレーザーの事である。

個々の縦モードの周波数（ $n$  番目）は

$$f_n = f_0 + n f_r \quad (2.1)$$

で与えられる。ここで、 $f_r$  は繰り返し周波数、 $f_0$  はオフセット周波数またはキャリアエンベロップオフセット (Carrier-Envelope Offset:CEO) 周波数と呼ばれている。こ

の光周波数コムは、一般的にモードロックレーザーを用いて実現されているので、本節では光周波数コムはモードロックレーザーを用いて発生されると仮定し説明を進める。モードロックレーザーについては、次節で説明を行う。

光周波数コムをモードロックレーザーで発生させたとなると出力電場は

$$E(t) = \sum_n C_n e^{j2\pi(f_0 + n f_r)t} \quad (2.2)$$

と表わされる。図 2.2 に、この時間応答を示した。繰り返し周波数  $f_r$  は、縦モード間隔の事で

$$f_r = \frac{c}{2n_g L} \quad (2.3)$$

で与えられる。ここで、 $L$  は共振器長、 $c$  は真空中での光速、 $n_g$  は群屈折率である。 $c/n_g$  は図 2.2 で示すパルスの包絡線の進む速度なので、繰り返し周波数は共振器内をパルスが往復する時間の逆数で決まる。ここで、光周波数コムの重要な特徴を理解できる。それは、たとえ共振器の縦モード間隔が屈折率の波長依存性により等間隔でない場合でも、光周波数コムの縦モード間隔は等間隔になるという事である。次に周期時間  $\tau = 1/f_r$  後の式 (2.2) について考える。

$$\begin{aligned} E(t + \tau) &= \sum_n C_n \exp \left\{ j2\pi(f_0 + n f_r) \left( t + \frac{1}{f_r} \right) \right\} \\ &= E(t) \exp \left( j \frac{2\pi f_0}{f_r} \right) \end{aligned} \quad (2.4)$$

式 (2.4) は、一定の位相成分  $\Delta\varphi = 2\pi f_0/f_r$  を除いて、 $E(t + \tau)$  と  $E(t)$  は同一になっている。従って、オフセット周波数  $f_0$  は位相速度  $v_p$  と群速度  $v_g = c/n_g$  が異なることから発生する事が理解できる。

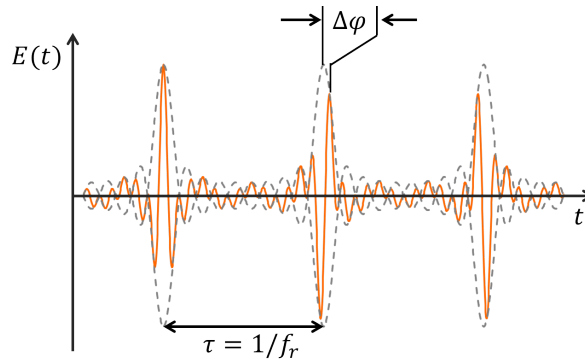


図 2.2 光周波数コムの時間応答

光周波数コムの一般的な応用としては、先ほど説明した2つのパラメータ ( $f_0$ ,  $f_r$ ) を原子時計などに正確に同期する事でマイクロ波と光周波数を結びつけることが出来る事である。もし、周波数がわからないレーザーの周波数  $\nu_{\text{laser}}$  を正確に測定したい時、光周波数コムと任意のレーザーのビート周波数  $f_{\text{beat}}$  を測定すれば、次式より

$$\nu_{\text{laser}} = f_0 + n f_r \pm f_{\text{beat}} \quad (2.5)$$

任意のレーザーの周波数を原子時計の精度で測定できる。つまり、光周波数コムは光周波数の測定に対する光の定規（又は分周期）として働く。

$f_0$ ,  $f_r$  を正確に制御するためには、 $f_0$ ,  $f_r$  を測定しなければならない。 $f_r$  はパルス周期の逆数なので、繰り返し周波数以上の帯域を持つ光検出器を用意すれば簡単に測定できる。しかし、 $f_0$  の測定は難しく、別の周波数が正確にわかっているレーザーを用いなくて、光周波数コム単体で測定するためにはスペクトルが1オクターブ以上広がっている必要がある。次に、 $f_0$  を測定する方法について説明する。非線形光学結晶を用いて第2高調波を発生させると

$$2f_n = 2f_0 + 2n f_r \quad (2.6)$$

の光ビームを得られる。これを  $2n$  番目とのビート周波数を測定すると

$$\begin{aligned} 2f_n - f_{2n} &= 2f_0 + 2n f_r - (f_0 + n f_r) \\ &= f_0 \end{aligned} \quad (2.7)$$

なり、 $f_0$  が測定できる。

### 2.1.1 モードロックレーザー

ここでは、一般的な光周波数コムの発生源であるモードロックレーザーについて理解を深めるためにモードロック（モード同期）[26–29] の説明を行う。

媒質の利得形状に不均一な広がりを持つレーザーの発振は、多くの周波数で同時に起きることが出来る（多モード発振）。この発振周波数（縦モード）間隔  $f_r$  は、ファブリー・ペロー共振器の自由スペクトル領域 (Free Spectral Range:FSR)

$$f_r = \frac{c}{2nL} \quad (2.8)$$

で与えられる。ただし、 $n$  は共振器内の屈折率である。多モード発振が起っている状態での電場は、各モードの電場の重ね合わせとして

$$E(t) = \sum_n C_n \exp\{j [2\pi(f_0 + n f_r)t + \varphi_n]\} \quad (2.9)$$

と表される。ここで、 $C_n$  は  $n$  番目のモード振幅、 $\varphi_n$  は  $n$  番目のモード位相である。和はすべての発振モードにわたって取る事とし、 $f_0$  はある一つの発振モード周波数として任意に選ぶ。一般に個々の縦モードは独立して発振するため、各モードの位相  $\varphi_n$  は等しくない。そのため、この多モード発振レーザーの出力を検波すると少しずつ異なるいくつものビート周波数が観測される。そこで、各モードの位相  $\varphi_n$  の相互の関係を一定になるように制御する方法がある。これをモードロック（モード同期）という。

次に、この場合を考えるために以下のような仮定を置く。 $N$  個の発振モードはすべて等しい振幅で発振している ( $C_n = 1/\sqrt{N}$ )。また、各モードの位相はすべて等しくゼロとする ( $\varphi_n = 0$ )。その時、式 (2.9) は

$$\begin{aligned} E(t) &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{n=1}^N e^{j[2\pi(f_0 + n f_r)t]} \\ &= \frac{1}{\sqrt{N}} e^{j[2\pi\{f_0 + \frac{(N+1)f_r}{2}\}t]} \frac{\sin(\pi N f_r t)}{\sin(\pi f_r t)} \end{aligned} \quad (2.10)$$

となる。レーザー強度  $I(t)$  は  $E(t)E(t)^*$  に比例し、次式で与えられる。

$$I(t) \propto \frac{1}{N} \frac{\sin^2(\pi N f_r t)}{\sin^2(\pi f_r t)} \quad (2.11)$$

これを計算したものを図 2.3 に示す。式 (2.11) より、 $t = s/f_r = s(2nL/c)$ 、( $s = 1, 2, 3, \dots$ ) の時に  $I(t)$  は極大になる。すなわち、光が共振器内を往復する時間のパルス列の形で出力される。また、各パルスのピークからゼロに至るまでの時間によって定義されるパルスの幅は、 $1/N f_r$  で与えられる。パルス幅は発振している縦モード数の逆数で決まるので、利得幅の広いレーザー媒質を用いて数多くの縦モードが発振した場合にパルス幅が短くなる。一般に、レーザー発振のスペクトル幅 (半値全幅)  $\Delta\nu$  と

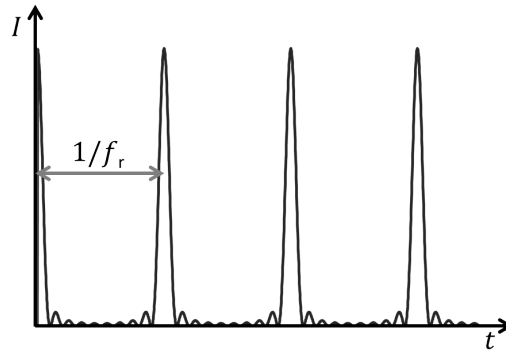


図 2.3 モードロックされている時の光強度の理論曲線

レーザー強度に対するパルス幅（半値全幅） $\Delta\tau$ の間には

$$\Delta\nu \cdot \Delta\tau \geq K \quad (2.12)$$

の関係（不確定積）がある。 $K$ はパルス波形により決まり、ガウス関数の場合は0.441、sech関数の場合は0.315である。この最小値をとるパルスをつーリエ限界パルスと呼ぶ。

レーザーをモードロック動作させるには、音響光学素子を用いる強制（能動）モードロック、飽和吸収素子を利用する自己（受動）モードロックがある。また、レーザー素子の非線形屈折率を使用したカーレンズモードロックもある。次に、自己モードロックについて簡単に説明する [27]。

### 自己モードロック

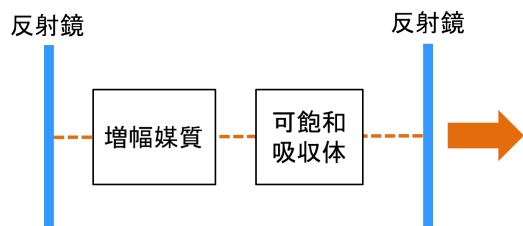


図 2.4 自己モードロックの構成図

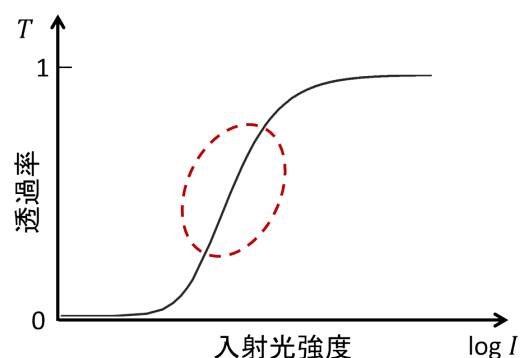


図 2.5 可飽和吸収体の光透過特性

自己モードロックは、可飽和吸収体を図 2.4 に示すように共振器内に設置して実現される。可飽和吸収体とは、共鳴した波長の光を入射すると、光の吸収係数が

$$\alpha = \frac{\alpha_0}{1 + \frac{I}{I_{\text{sat}}}} \quad (2.13)$$

で記述されるような飽和特性を示すものである。ただし、 $\alpha_0$  は小信号光強度吸収係数、 $I_{\text{sat}}$  は飽和強度、 $I$  は入射強度である。図 2.5 にこれの透過特性を示す。

可飽和吸収体に図 2.6 の実線で示すような光パルスが入ってきた時、図 2.5 の赤い破線の領域に示す非線形透過特性により出力光パルスは図 2.6 の破線のようにになる。つまり、可飽和吸収体は、光強度の小さい入力に対しては吸収が大きく、光強度が大きくなると吸収が飽和するため、パルス入力に対してパルス幅を狭くする働きがある。従って、光が共振器内を周回していく間にパルス幅が狭くなっていく。しかし共振器内に

は、この他に増幅器や分散性の光学素子がある。これらがパルス幅を広げる働きをする。そのため定常状態では、これらの均衡がとれて超短光パルス発振が得られる。このように外部から信号を加えないでモードロックする方法を自己モードロックという。

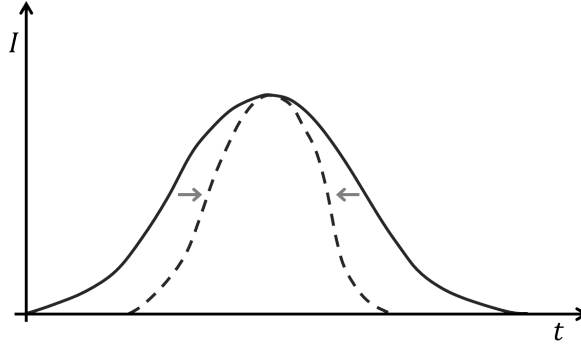


図 2.6 可飽和吸収体によるパルス圧縮

## 2.2 電気光学変調器型光周波数コム

### 2.2.1 電気光学変調器

物質に外部電場を掛けると誘電率が変化する。電場の 1 次の効果をポッケル効果、2 次の効果をカー効果という。これらを総称して電気光学効果 (Electro-Optic Effect) という。この効果を用いると光の位相を変調することが出来る。また、生じた屈折率（又は誘電率）変化は異方性があるので、それにより光の偏光状態も操作することが出来る。さらに波長板や偏光板を組み合わせることにより、光の強度を変調することも可能である。これらを総称して電気光学変調器 (Electro-Optic Modulator) という [31]。

ここでは、電気光学変調器に入射した電場が位相変調されサイドバンドを生成することを導出する [30]。まずは、マクスウェル方程式を用いて非線形光学媒質中での波動方程式を求める。誘電媒質中におけるマクスウェル方程式は下記のように与えられる。

$$\text{rot}\mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad (2.14)$$

$$\text{rot}\mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (2.15)$$

$$\text{div}\mathbf{D} = 0 \quad (2.16)$$

$$\text{div}\mathbf{H} = 0 \quad (2.17)$$

ここで、 $\mu_0$  は真空中での透磁率である。電束密度  $\mathbf{D}$  は電場  $\mathbf{E}$  と分極  $\mathbf{P}$ （は線形分極  $\mathbf{P}_L$  と非線形分極  $\mathbf{P}_{NL}$  に分けられる）を用いて

$$\begin{aligned}\mathbf{D} &= \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \\ &= \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL}\end{aligned}\quad (2.18)$$

となる。ここで、 $\varepsilon_0$  は真空中での誘電率である。式 (2.14)、(2.15)、(2.16) と下記のベクトル演算公式

$$\text{rot}(\text{rot} \mathbf{E}) = \text{grad}(\text{div} \mathbf{E}) - \nabla^2 \mathbf{E} \quad (2.19)$$

を用いると

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \quad (2.20)$$

が得られる。ここで、 $c = 1/\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}$  は真空中での光速である。この波動方程式が媒質中に非線形な分極が存在するときの電磁波の伝搬を記述する非線形伝搬方程式である [32]。

線形分極  $\mathbf{P}_L$  と電場  $\mathbf{E}$  は、分極の時間遅れのみ（局所応答\*）を考慮した

$$\mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \chi^{(1)}(t - t') \mathbf{E}(\mathbf{r}, t') dt' \quad (2.21)$$

と表すことが出来る。この式では、時刻  $t$  以外の電場の影響を  $t$  からのずれ  $t'$  として考慮している。その電場  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t')$  の影響の大きさを感受率  $\chi^{(1)}(t - t')$  としてすべて積分したのになっている。ただし、未来の影響は与えられないので、 $t' < 0$  のとき  $\chi^{(1)}(t - t') = 0$  である [33]。同様に、非線形分極  $\mathbf{P}_{NL}$  も 2 次の非線形感受率  $\chi^{(2)}$  により

$$\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t) = \varepsilon_0 \iint_{-\infty}^{\infty} \chi^{(2)}(t - t_1, t - t_2) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t_1) \mathbf{E}(\mathbf{r}, t_2) dt_1 dt_2 \quad (2.22)$$

で表すことが出来る。

次に、式を簡単にするために以下のような仮定を置く。まず  $\mathbf{P}_{NL}$  は  $\mathbf{P}_L$  に比べて十分に小さく  $\mathbf{P}_L$  に対する摂動として扱える。また、入射光は直線偏光で伝搬中も入射光と同じ偏光が保たれるとする。この仮定のもと、入射光の偏光方向を  $x$  軸方向とし、ゆっくりと変動する包絡線と急変動成分を分離すると電場  $\mathbf{E}$  は

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \hat{x} [E(\mathbf{r}, t) \exp(j\omega_0 t) + \text{c.c.}] \quad (2.23)$$

と表される。ここで、 $\omega_0$  はキャリア角周波数、c.c.(complex conjugate) は右辺の第 1 項の複素共役である。同様に、分極  $\mathbf{P}_L$ 、 $\mathbf{P}_{NL}$  も以下のように表される。

$$\mathbf{P}_L(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \hat{x} [P_L(\mathbf{r}, t) \exp(j\omega_0 t) + \text{c.c.}] \quad (2.24)$$

$$\mathbf{P}_{NL}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} \hat{x} [P_{NL}(\mathbf{r}, t) \exp(j\omega_0 t) + \text{c.c.}] \quad (2.25)$$

---

\* 局所応答： $\mathbf{P}$  も  $\mathbf{E}$  も空間平均したマクロな物理量として考えることができるため、位置依存性を落とした応答のこと



$\tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0)$  は  $E(\mathbf{r}, t)e^{j\omega_0 t}$  のフーリエ変換

$$\tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) = \int_{-\infty}^{\infty} E(\mathbf{r}, t) \exp[-j(\omega - \omega_0)t] dt \quad (2.26)$$

である。式 (2.21)、(2.24) と (2.26) から線形分極のフーリエ成分は

$$\tilde{P}_L(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) = \varepsilon_0 \tilde{\chi}_{xx}^{(1)}(\omega) \tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) \quad (2.27)$$

である\*。  $\tilde{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0)$  を求める際は、非線形応答  $\mathbf{P}_{NL}$  は瞬間的であると仮定して積分を簡略化する。

$$\tilde{P}_{NL}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) = \varepsilon_0 \varepsilon_{NL} \tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) \quad (2.28)$$

$\varepsilon_{NL}$  は誘電率に対する非線形項を表し、電気光学変調の場合には電気信号の電場方向  $\alpha$ 、光電場の偏光方向  $x$  とした時の電気光学定数  $\gamma_{x\alpha}$  を用いて

$$\varepsilon_{NL} = -n^4 \gamma_{x\alpha} E_\alpha \sin(\omega_r t - k_r z) \quad (2.29)$$

で与えられる。ここで、 $n$  は屈折率、 $E_\alpha$  は電気信号による電場強度である。屈折率変化を  $\Delta n$  とすると

$$\varepsilon = (n + \Delta n)^2 \simeq n^2 + 2n\Delta n \quad (2.30)$$

近似できるので、 $\Delta n = \varepsilon_{NL}/2n$  で表される。非線形分極  $\mathbf{P}_{NL}$  に対して通常はフーリエ変換で表すことはできないが、摂動として扱えることを考慮して伝搬方程式を導く際は定数として扱う。式 (2.20) を下記のフーリエ変換公式 [34]

$$\frac{d^n f(t)}{dt^n} \leftrightarrow (j\omega)^n \tilde{F}(\omega) \quad (2.31)$$

を用いて解くと

$$\nabla^2 \tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) + \varepsilon(\omega) \frac{\omega^2}{c^2} \tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) = 0 \quad (2.32)$$

が得られる。ここで、 $\varepsilon(\omega) = 1 + \tilde{\chi}_{xx}^{(1)}(\omega) + \varepsilon_{NL}$  である。上式の解として

$$\tilde{E}(\mathbf{r}, \omega - \omega_0) = \tilde{E}(z, \omega - \omega_0) \exp(-jk_0 z) \quad (2.33)$$

を仮定する。  $\tilde{E}(z, \omega - \omega_0)$  は  $z$  方向にゆっくり変化する振幅を表す。  $k_0 = n(\omega_0)\omega_0/c$  はキャリア成分の  $z$  方向の波数である。式 (2.32) に (2.33) を代入する。ただし、 $xy$  平面内分布は一様であると仮定し、 $\nabla^2 = \frac{\partial^2}{\partial z^2}$  とする。また、 $\tilde{E}(z, \omega - \omega_0)$  は  $z$  方向に対してゆっくりと変化する成分なので  $\frac{\partial^2 \tilde{E}}{\partial z^2}$  は省略する。  $k^2(\omega) \simeq k_0$  より  $k^2(\omega) - k_0^2 \simeq 2k_0(k(\omega) - k_0)$  と近似できる。

$$\frac{\partial \tilde{E}}{\partial z} = -j[k(\omega) - k_0 + \Delta k] \tilde{E} \quad (2.34)$$

---

\* 畳み込み積分定理 [34]

$$f_1(t) * f_2(t) = \int_{-\infty}^{\infty} f_1(t - \tau) f_2(\tau) d\tau \leftrightarrow \tilde{F}_1(\omega) \tilde{F}_2(\omega)$$

ただし、 $f_1(t) \leftrightarrow \tilde{F}_1(\omega)$ 、 $f_2(t) \leftrightarrow \tilde{F}_2(\omega)$  である。

ここで、 $k(\omega) = n(\omega)\omega/c$ 、 $\Delta k = \Delta n\omega/c$ である。 $k(\omega)$ を $\omega_0$ のまわりでテイラー展開し $k_2$ の項まで求める。

$$k(\omega) \simeq k_0 + (\omega - \omega_0)k_1 + \frac{1}{2}(\omega - \omega_0)^2 k_2 \quad (2.35)$$

ここで

$$k_n = \left( \frac{d^n k}{d\omega^n} \right)_{\omega=\omega_0}$$

である。 $k_1 = 1/v_g$  (群速度) であり、 $k_2$ の項は群速度分散を表している。式(2.34)に(2.35)を代入して(2.31)を用いて逆フーリエ変換を行うと

$$\frac{\partial E}{\partial z} = -k_1 \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{j}{2} k_2 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} - j \Delta k E \quad (2.36)$$

が得られる。

$\Delta n$ に式(2.29)を代入すると

$$\frac{\partial E}{\partial z} = -k_1 \frac{\partial E}{\partial t} + \frac{j}{2} k_2 \frac{\partial^2 E}{\partial t^2} + j \phi_m \sin(\omega_r t - k_r z) E \quad (2.37)$$

となる。ここで、 $\phi_m = \omega n^3 \gamma_{x\alpha} / 2c$ は単位長さあたりの変調指数を表している。 $k_1$ の項は被変調光の包絡線に速度を与える。効率良く変調するためには、被変調光が常に同じ変調信号の位相を感じる必要がある。そのため上式を被変調光と同じ群速度で進む座標に変換

$$T = t - k_1 z = t - \frac{z}{v_g}$$

すると

$$\frac{\partial E(z, T)}{\partial z} = \frac{j}{2} k_2 \frac{\partial^2 E(z, T)}{\partial T^2} + j \phi_m \sin \left\{ \omega_r T + \left( \frac{1}{v_g} - \frac{1}{v_r} \right) \omega_r z \right\} E(z, T) \quad (2.38)$$

となる。変調信号であるマイクロ波に対して導波路構造を採用するなどして、変調信号の位相速度 $v_r$ を変調される光の群速度 $v_g$ に一致させれば

$$\frac{\partial E(z, T)}{\partial z} = \frac{j}{2} k_2 \frac{\partial^2 E(z, T)}{\partial T^2} + j \phi_m \sin(\omega_r T) E(z, T) \quad (2.39)$$

が得られ、効率の良い変調ができる。

次に、群速度分散が無視できる程短い理想的な電気光学変調器を考える。その時、上式は以下のような式になる。

$$\frac{\partial E(z, T)}{\partial z} = +j \phi_m \sin(\omega_r T) E(z, T) \quad (2.40)$$

上式を初期値  $E(0, T)$  として解くと

$$E(z, T) = E(0, T) \exp [j\phi_m z \sin(\omega_r T)] \quad (2.41)$$

が得られる。 $\phi_m z = M$  とおき、 $\exp [jM \sin(\omega_r T)]$  をフーリエ級数に展開する。

$$\begin{aligned} \exp [jM \sin(\omega_r T)] &= \{J_0(M) \\ &\quad + J_1(M) \exp(j\omega_r T) + J_{-1}(M) \exp(-j\omega_r T) \\ &\quad + J_2(M) \exp(j2\omega_r T) + J_{-2}(M) \exp(-j2\omega_r T) \\ &\quad + J_3(M) \exp(j3\omega_r T) + J_{-3}(M) \exp(-j3\omega_r T) \\ &\quad + \cdots\} \\ &= \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(M) \exp(jn\omega_r T) \end{aligned} \quad (2.42)$$

ここで、 $J_n(M)$  は第 1 種ベッセル関数である。上式より位相変調を受けた光は、入射したレーザー角周波数  $\omega_c$  を中心に変調角周波数  $\omega_r$  の間隔でサイドバンドを生成する。

### 2.2.2 電気光学変調器型光周波数コム

式 (2.42) からわかるように変調指数が大きいほどサイドバンドの広がりが大きくなる。しかし、1 台の変調器の変調指数が大きくななくても、複数台の変調器を直列に並べることで効率を上げることが出来る。この方法で実際に変調器を数百台から数千台用意することは非現実的であるが、共振器内に変調器を入れて干渉効果を利用することで同様のことが可能となる。

ここでは、電気光学変調器 (Electro-Optic Modulator:EOM) 型光周波数コム又は光周波数コム発生器 (図 2.7) の透過光が一般的にどのようなスペクトルを持つのかについて述べる [30]。ここでは以下のような仮定をおく。入射光周波数  $f_0$  はファブリー・ペロー (Fabry Perot:FP) 共振器の共振周波数に一致しているとする。また、変調周波

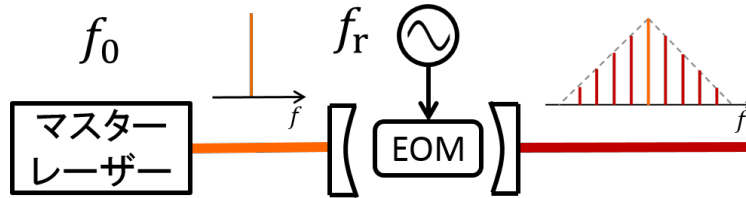


図 2.7 電気光学変調器型光周波数コム

数  $f_r$  を自由スペクトル領域 (Free Spectral Range:FSR) の整数倍に一致させたとする。片道の変調指数を  $M$  ラジアンとして光が EOM 型光周波数コムに入射され、共振器内部で  $n$  回往復した後に出力される電場  $E_{on}(t)$  は

$$\begin{aligned} E_{o0}(t) &= T \exp[jM \sin(2\pi f_r t)] E_i \exp(j2\pi f_0 t) \\ E_{o1}(t) &= TR \exp[j3M \sin(2\pi f_r t)] E_i \exp(j2\pi f_0 t) \\ &\vdots = \vdots \\ E_{on}(t) &= TR^n \exp[j(2n+1)M \sin(2\pi f_r t)] E_i \exp(j2\pi f_0 t) \\ &\vdots = \vdots \end{aligned} \quad (2.43)$$

と表すことが出来る。ここで  $R$ 、 $T$  は、それぞれファブリー・ペロー共振器を構成している鏡の強度反射率と透過率である。出力光はこれらを全て足し合わせたものなので

$$\begin{aligned} E_o(t) &= \sum_{n=0}^{\infty} E_{on}(t) \\ &= \frac{T \exp[jM \sin(2\pi f_r t)]}{1 - R \exp[j2M \sin(2\pi f_r t)]} E_i \exp(j2\pi f_0 t) \end{aligned} \quad (2.44)$$

のように表される。

電気光学変調器は変調信号であるマイクロ波に従って屈折率を変化させる。そのため電気光学変調器型光周波数コムは、ファブリー・ペロー共振器を高速に掃引したシャッターとして働くと考えられる。この動作を図 2.8 に示す。従って、得られるパルス列のピークパワーは入射光平均パワーである。出力光はファブリー・ペロー共振器に依存してローレンツ型になる。

$$I_o(t) = \frac{T^2 E_i^2}{1 + R^2 - 2R \cos\{2M \sin(2\pi f_r t)\}} \quad (2.45)$$

透過光強度が半分になる時間  $\Delta t$  は上式から

$$1 + R^2 - 2R \cos\{4\pi M f_r \Delta t\} = 2(1 - R)^2$$

によって与えられ、パルス全幅  $\Delta\tau = 2\Delta t$  は

$$\Delta\tau = \frac{1}{2M\mathcal{F}f_r} \quad (2.46)$$

と表される。ここで、フィネス  $\mathcal{F}$

$$\begin{aligned} \mathcal{F} &= \frac{\pi\sqrt{R}}{1-R} \\ &\simeq \frac{\pi}{1-R} \end{aligned} \quad (2.47)$$

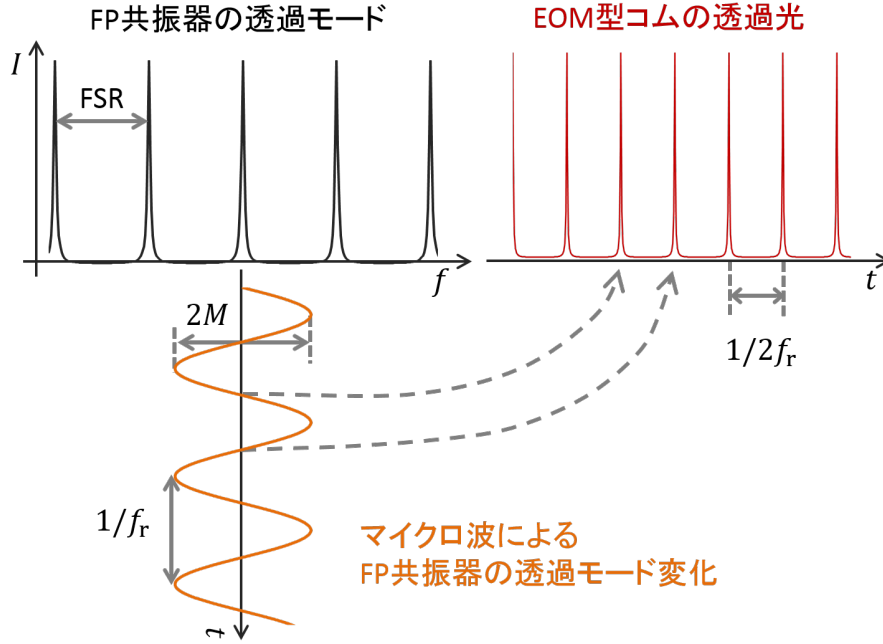


図 2.8 電気光学変調器型光周波数コムの動作

である。式 (2.46) よりファブリー・ペロー共振器のフィネスが高く、透過モードを横切る速度が速い程、短いパルスを切り出すことが出来る。

式 (2.44) と (2.47) を用いて、最大透過光付近での電場について考えると

$$\begin{aligned}
 E_o(t) &= \frac{E_i \exp(j2\pi f_0 t)}{\exp(j4\pi M f_r t) - j \frac{2F}{\pi} \sin(2\pi M f_r t)} \\
 &\simeq \frac{E_i \exp(j2\pi f_0 t)}{1 - j4M F f_r t}
 \end{aligned} \tag{2.48}$$

になる。式 (2.45)、図 2.8 からわかるように、出力光は周期  $2f_r$  毎にローレンツ型のパルスを発生させる。従って、電場は式 (2.48) を用いて下記のように表せる。

$$\begin{aligned}
 E_o(t) &= \sum_{p=-\infty}^{\infty} \left\{ \frac{1}{1 - j4M F f_r (t - \frac{p}{f_r})} \right. \\
 &\quad \left. + \frac{1}{1 + j4M F f_r (t - \frac{2p-1}{2f_r})} \right\} E_i \exp(j2\pi f_0 t)
 \end{aligned} \tag{2.49}$$

2 項目は  $\sin(\theta + \pi) = -\sin(\theta)$  なので符号が反転している。電気光学変調器型光周波

数コムの各出力強度を知るために、式 (2.49) を下式のフーリエ変換公式 [34]

$$\begin{aligned}
 e^{-at}u(t) &\leftrightarrow \frac{1}{a + j\omega} \\
 &\quad u(t) \text{ は単位ステップ関数} \\
 \tilde{F}(t) &\leftrightarrow 2\pi f(-\omega) \\
 f(at) &\leftrightarrow \frac{1}{|a|} \tilde{F}\left(\frac{\omega}{a}\right) \\
 e^{j\omega_0 t} f(t) &\leftrightarrow \tilde{F}(\omega - \omega_0) \\
 \sum_{n=-\infty}^{\infty} g(t + nT) &= \frac{1}{T} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \tilde{G}(n\omega_0) e^{jn\omega_0 t} \\
 &\quad \text{ただし } \omega_0 = \frac{2\pi}{T}
 \end{aligned}$$

を用いてフーリエ変換すると

$$\begin{aligned}
 E_o(t) &= \sum_{n=-\infty}^{-1} (-1)^{|n|} \frac{\pi}{2M\mathcal{F}} \exp\left(-\frac{|n|\pi}{2M\mathcal{F}}\right) E_i \exp\{j2\pi(f_0 - |n|f_r)t\} \\
 &\quad + \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\pi}{2M\mathcal{F}} \exp\left(-\frac{|n|\pi}{2M\mathcal{F}}\right) E_i \exp\{j2\pi(f_0 + nf_r)t\}
 \end{aligned} \tag{2.50}$$

となる。 $n$  次のサイドバンド強度  $I_{on}$  は式 (2.50) を 2 乗したものにファブリー・ペロー共振器の透過効率  $\eta_{FP}$  を掛けた

$$I_{on} = \eta_{FP} \left(\frac{\pi}{2M\mathcal{F}}\right)^2 \exp\left(-\frac{|n|\pi}{M\mathcal{F}}\right) |E_i|^2 \tag{2.51}$$

と表される。これにより出力光のスペクトル形状は、変調指数  $M$  とファブリー・ペロー共振器のフィネス  $\mathcal{F}$  で大まかに決定されることがわかる。図 2.9 に実際我々が用いた電気光学変調器型光周波数コムのスペクトルを示した。図 2.9 の各サイドバンド強度は、式 (2.51) で表したように指数関数的に減少していることがわかる。

電気光学変調器型光周波数コムの発生スパン限界について簡単に説明する。ファブリー・ペロー共振器の FSR は群速度で与えられるが、群速度分散は波長による群速度のずれを表しており、キャリア周波数から遠く離れたサイドバンドに対して FSR が異なることを意味する。サイドバンドの周波数間隔は厳密に変調周波数に一致しているので、キャリアから離れるに従ってずれが大きくなり、ある程度以上では完全に透過モードから外れるため、サイドバンドが出力されなくなる。そのため、電気光学変調器型光周波数コムの発生スパンには限界が存在する。

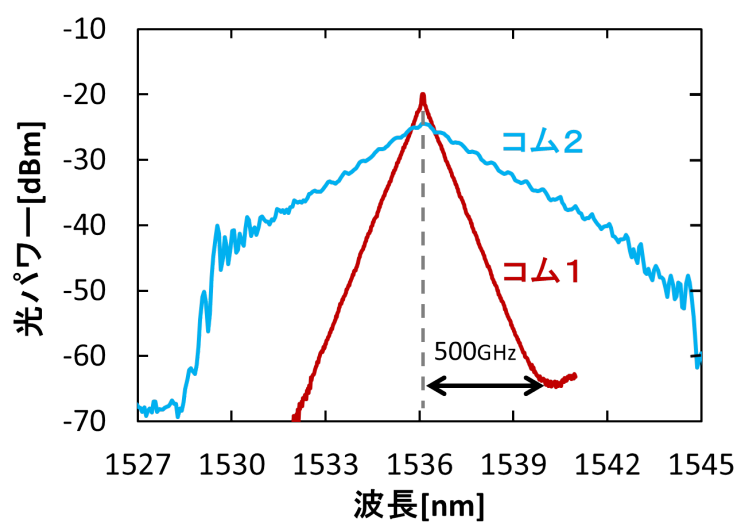


図 2.9 電気光学変調器型光周波数コムのスペクトル

## 第3章 デュアルコム分光法

前章では、本研究で用いた光源である光周波数コムの説明を行った。3章では、この光周波数コムを2台用いてフーリエ分光するデュアルコム分光法についての説明を行う。まず初めに、一般的な白色光源を用いたフーリエ分光 [35,36] について述べ、次にデュアルコム分光法の原理 [18, 24, 37–39] について説明する。

### 3.1 フーリエ分光法

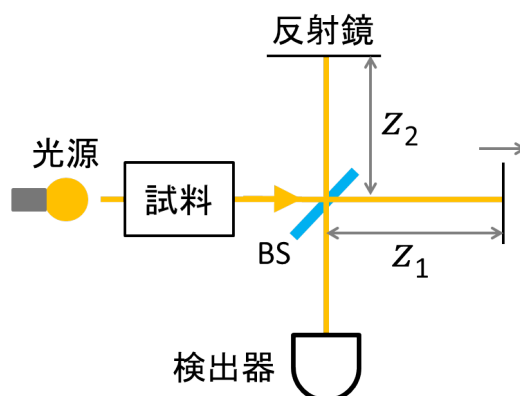


図 3.1 マイケルソン干渉計

フーリエ分光法または FT-IR(フーリエ変換赤外分光計:Fourier Transform Infrared Spectrometer) は、干渉計とコンピュータを用いて各波長成分を測定する方法である。そのため、分散分光法\* と異なり単一検出器ですべての波長を同時に測定する事が出来る。これをマルチプレクシング (multiplexing) と呼ぶ。本節では、マイケルソン型干渉計を用いてフーリエ分光法の原理について説明した後に、分散分光法と比較したときのフーリエ分光法の利点 (フェルゲット利得) について述べる。

図 3.1 にマイケルソン干渉計を示した。ここで検出器に入射する電場は、試料を透

\* 分散分光法：回折格子などを用いて光を空間的に分離して、それぞれの波長を測定する方法



過した電場振幅を  $a(k)$  とするとそれぞれの経路による位相項を掛け合わせて

$$E_{\text{out}} = \frac{a(k)}{2} \exp(j2kz_1) + \frac{a(k)}{2} \exp(j2kz_2) \quad (3.1)$$

と表される。ここで、 $k$  は波数である。従って、波数帯域  $\Delta k$  内の検出器の光強度  $\Delta I$  は

$$\begin{aligned} \Delta I(\Delta z) &\propto \frac{\langle a(k)a^*(k) \rangle}{2} \{1 + \cos(k\Delta z)\} \\ &= G_h(k)\Delta k [1 + \cos(k\Delta z)] \end{aligned} \quad (3.2)$$

となる。ただし、

$$\begin{aligned} \Delta z &= 2(z_1 - z_2) \\ G_h(k)\Delta k &= \frac{\langle a(k)a^*(k) \rangle}{2} \end{aligned}$$

ここで、 $\langle \rangle$  は集合平均、 $\Delta z$  は光路差、 $G_h(k)$  は試料のパワースペクトル密度である。式 (3.2) の交流成分のみを取り出し、全ての波長成分について考えると次式のように表される。

$$I_{\text{ac}}(\Delta z) = \int_0^\infty G_h(k) \cos(k\Delta z) dk \quad (3.3)$$

これをインターフェログラム (interferogram)\* と呼ぶ。図 3.2 に典型的なインターフェログラムを示す。光路差がゼロ ( $\Delta z = 0$ ) の時にすべての波長の光が干渉し強めあうため、強い信号 (センタースト: centerburst) が得られる。パワースペクトル密度は  $k \geq 0$  の範囲しか持たないが、数式の簡単化のため以下の拡張を行う。

$$G(k) = \frac{G_h(-k) + G_h(k)}{2} \quad (3.4)$$

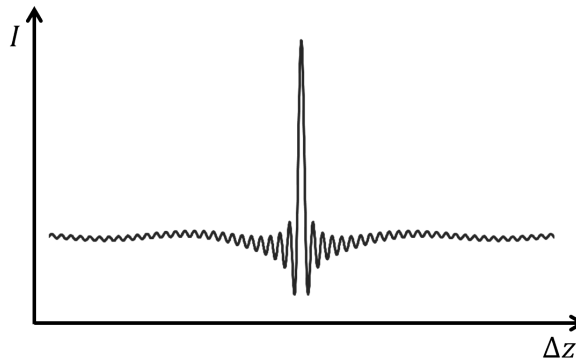


図 3.2 インターフェログラム

---

\*直流成分を含んだ物も同様にインターフェログラムと呼ぶ

これを用いると式 (3.3) は

$$I_{ac}(\Delta z) = \int_{-\infty}^{\infty} G(k) \exp(jk\Delta z) dk \quad (3.5)$$

となる。これを逆フーリエ変換すると

$$G(k) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} I_{ac}(z) \exp(-jkz) dz \quad (3.6)$$

になり、全てのスペクトルを測定することが出来る。これがフーリエ分光法の原理である。

実際には、 $\Delta z$  を無限に動かすことはできないので、測定できる波数には制限がある。 $\Delta z$  を  $\Delta d$  毎、 $N$  点測定したとすると周波数分解能は

$$\Delta f = \frac{c}{N\Delta d} \quad (3.7)$$

になり、最大周波数は

$$f_{\max} = \frac{c}{2\Delta d} \quad (3.8)$$

と表される。

### フェルゲット利得

ここでは、分散分光法とフーリエ分光法の比較を行う。分散分光法で、単一の検出器を使ってスペクトルを測定するには走査分散分光法を用いればよい。この時、波数を  $\sigma_1 \sim \sigma_N$  まで測定し、波数分解能を  $\Delta\sigma$  とすると測定できる波数の数  $N$  は

$$N = \frac{\sigma_N - \sigma_1}{\Delta\sigma} \quad (3.9)$$

と表される。熱雑音が支配的である時、SN 比は時間の平方根に比例する。全測定時間を  $T$  とすると、フーリエ分光法の SN 比は

$$\text{SNR}_{\text{FT}} \propto \sqrt{T} \quad (3.10)$$

になり、分散分光法は

$$\text{SNR}_{\text{DS}} \propto \sqrt{\frac{T}{N}} \quad (3.11)$$

と表される。従って、その比は

$$\frac{\text{SNR}_{\text{FT}}}{\text{SNR}_{\text{DS}}} = \sqrt{N} \quad (3.12)$$

となる。式 (3.12) からわかるように熱雑音が支配的である時、フーリエ分光法は分散分光法よりも SN 比が  $\sqrt{N}$  倍高くなる。これをフェルゲット (Fellgett) 利得という。

### 3.2 デュアルコム分光法

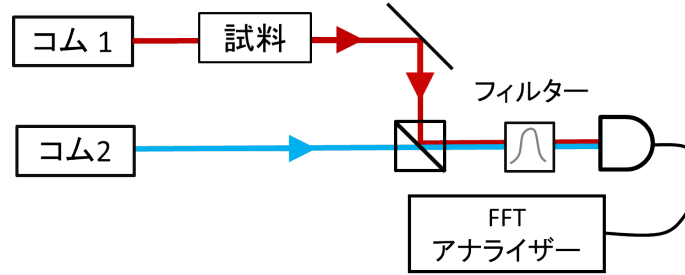


図 3.3 デュアルコム分光法の構成図

デュアルコム分光法とは、光周波数コム光源を直接分光光源として用いるダイレクト光周波数コム分光法の一つで、2台の繰り返し周波数がわずかに異なる光周波数コム光源を用いてフーリエ分光を行う方法である。図 3.3 にデュアルコム分光法の簡単な構成図を示した。ここで、2台の光周波数コムの  $n(m)$  番目の周波数  $f_{1,n}, f_{2,m}$  を

$$f_{1,n} = f_{0,1} + n f_{r,1} \quad (3.13)$$

$$f_{2,m} = f_{0,2} + m f_{r,2} \quad (3.14)$$

とする。また、今後の説明の為にオフセット周波数差  $\Delta f_0$ 、繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  を

$$\Delta f_0 = f_{0,1} - f_{0,2} \quad (3.15)$$

$$\Delta f_r = f_{r,1} - f_{r,2} \quad (3.16)$$

と定義する。ただし、それぞれの光周波数コムは  $f_{0,1} \geq f_{0,2}$ 、 $f_{r,1} > f_{r,2}$ 、 $f_{r,2} \gg \Delta f_r$  の条件を満たすものとする。また、オフセット周波数差  $\Delta f_0$  と繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  の制御は、非常に安定な同期がされているとし一定値であるとする。

デュアルコム分光法の原理は、周波数領域と時間領域の2つの領域から説明できる。本節では、まず初めに理解が簡単な周波数領域での説明を行い、その後に時間領域での説明を行う。

#### 周波数領域

デュアルコム分光法を周波数領域上で考えると、複数台の周波数の異なる安定なレーザーを用いてヘテロダイン\*検波する事に相当する。図 3.4 にデュアルコム分光の周波数スペクトルを示した。図 3.4 の上図（光の周波数スペクトル）からわかるように、次

---

\* 信号光  $f_s$  に振幅、周波数が周知な局部発振光  $f_{LO}$  を加えることでビート信号 ( $f_{IF} = f_s - f_{LO}$ ) を観測し、信号光の周波数スペクトルを測定する事が出来る。この方法をヘテロダイン ( $f_s \neq f_{LO}$ ) またはホモダイン ( $f_s = f_{LO}$ ) 検波と呼ぶ。また、この方法を用いるとショット雑音以外の雑音の寄与を小さくすることも出来る [27]。

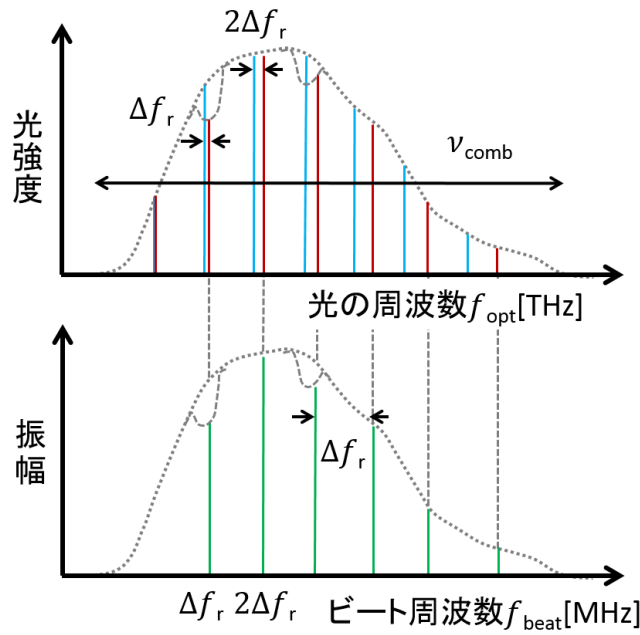
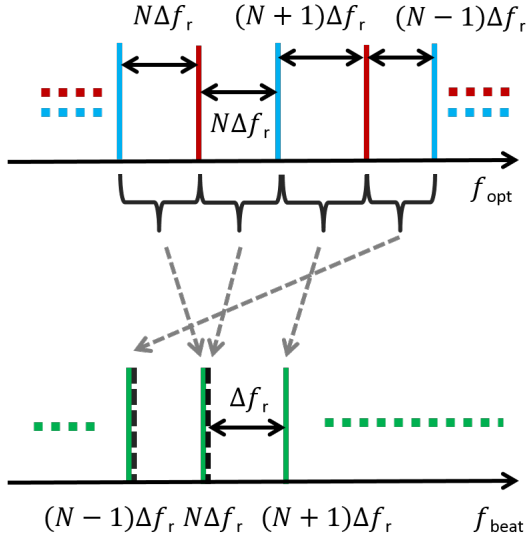
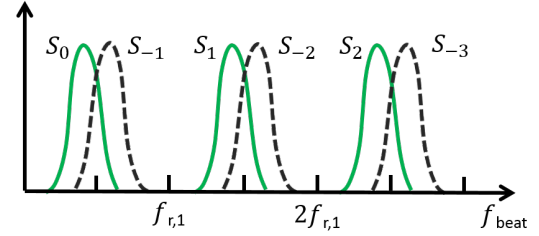


図 3.4 デュアルコム分光のスペクトル

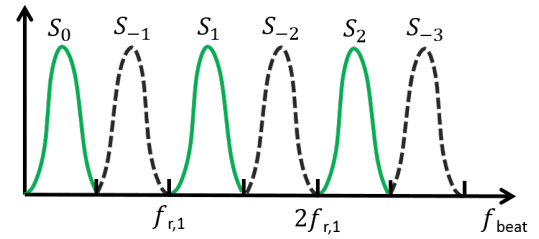
数  $n$  でコム 1 とコム 2 のモードが完全に一致したとしても、 $n+1$  の次数では  $\Delta f_r$  の周波数差を生じる。また、 $n+2$  では  $2\Delta f_r$  となり、 $\Delta f_r$  の整数倍でコム 1 とコム 2 の周波数差が広がっていく。このような周波数スペクトルのそれぞれのビート信号（差周波数）を測定すると図 3.4 の下図のようなビート周波数（ラジオ周波数）領域でのスペクトルが得られ、それぞれのビート信号は、コム 1 の個々の縦モードと一対一の関係で結びつくことになる。従って、この方法を用いることで、コム 1 の光の周波数スペクトル（周波数が早過ぎて直接測定する事が出来ない領域）をラジオ周波数領域（測定可能な低周波領域）にマッピングまたは圧縮する事が可能となる。次式に測定される各ビート信号の周波数を示した。

$$\begin{aligned} f_{\text{beat},p} &= f_{1,n} - f_{2,m} \\ &= \Delta f_0 + p\Delta f_r \end{aligned} \quad (3.17)$$

ただし、 $p = m = n$  とし、 $m \neq n$  の項は無視する。この方法で光周波数コムの個々の縦モードと一対一の関係でビート信号を結びつけるためには以下の条件を満たさなければならない。まず、光周波数コムのスペクトル幅  $\nu_{\text{comb}} = Nf_{r,1}$  ( $N$  は最大縦モード

図 3.5  $N\Delta f_r = f_{r,1}/2$  時の折り返し

(a) 重複した時



(b) 重複しないようにした時

図 3.6 ビート周波数領域での重複

次数) と繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  の関係は、

$$\begin{aligned} N\Delta f_r &< \frac{f_{r,2}}{2} \\ \nu_{\text{comb}} &< \frac{f_{r,1}f_{r,2}}{2\Delta f_r} \end{aligned} \quad (3.18)$$

を満たす (サンプリング定理)。これはオフセット周波数差を  $\Delta f_0 = 0$  とした時に、ビート周波数領域での折り返し信号 (エイリアシング: Aliasing) を観測しないための条件である (図 3.5)。そのため、オフセット周波数差の値によっては図 3.6 の (a) に示したような重複が起きる。ここで、 $S_x$  は  $x = m - n$  のビート周波数領域でのスペクトルである。従って、オフセット周波数差は重複が起きないように次の条件を満たす必要がある。

$$\Delta f_0 < \frac{f_{r,2}}{2} - N\Delta f_r \quad (3.19)$$

図 3.6 の (b) に、この条件 (式 (3.19)) を満たした時の各ビート信号を示した。

### 時間領域

デュアルコム分光法を時間領域上で見ると、光サンプリングオシロスコープと類似している。この時間領域上の様子を簡単に理解するために、デュアルコム分光法をフー

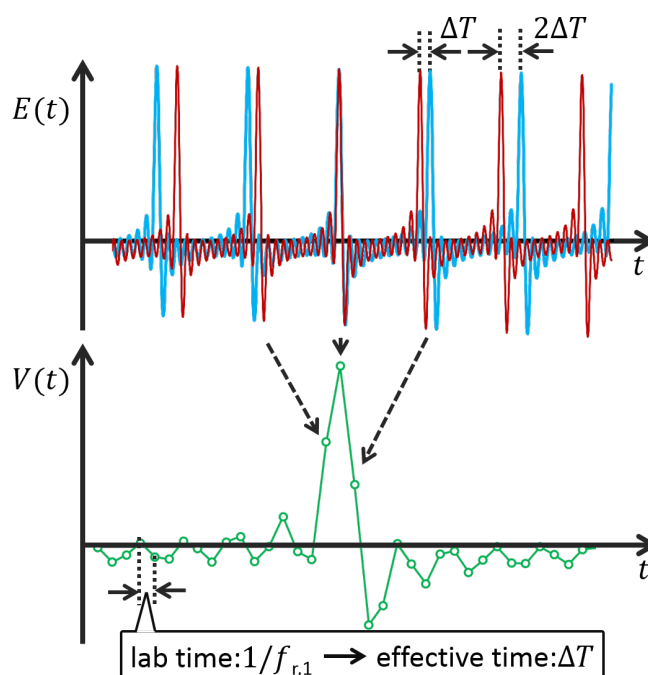


図 3.7 デュアルコム分光の時間応答

リエ分光法に対応させて考える。その場合、フーリエ分光法の固定鏡からの反射光は光周波数コム 1 に、可動鏡からの光はもう一方の光周波数コム 2 に置き換えられる。フーリエ分光法では可動鏡を  $\Delta d/2$  毎に変化させてインターフェログラムを測定していたが、デュアルコム分光法では図 3.7 に示したような時間変化でのインターフェログラムが測定される。このデュアルコム分光法での各時間（繰り返し周波数でデータ取得が出来るとする）の振幅は、2 台のコム相互相関で与えられ、2 台のコムのパルスが完全に一致した時にセンターバーストが生じる。つまりこれは、フーリエ分光法の可動鏡で行う  $\Delta T$  秒毎の遅延 ( $\Delta d$ ) の変化を  $1/f_{r,1}$  秒で行っていることに相当する。

ここで、可動鏡の移動間隔に対応する  $\Delta T$  は

$$\begin{aligned}\Delta T &= \frac{1}{f_{r,2}} - \frac{1}{f_{r,1}} \\ &= \frac{\Delta f_r}{f_{r,1}f_{r,2}}\end{aligned}\tag{3.20}$$

で与えられる。そこで測定されたインターフェログラムの時間軸 ( $1/f_{r,1}$ :lab time) を 2 台のコムのパルス時間差  $\Delta T$  に変換した時間軸を実行時間 (effective time) と呼ぶ。実行時間軸で考えると信号は  $\Delta T$  間隔でデータの取得を行っている。従って、測定可

能な最大周波数  $\nu_{\text{comb}}$  はサンプリング（ナイキスト）定理より

$$\begin{aligned}\nu_{\text{comb}} &< \frac{1}{2\Delta T} \\ &< \frac{f_{r,1}f_{r,2}}{2\Delta f_r}\end{aligned}\quad (3.21)$$

で表され、式 (3.18) の条件と等しくなる。

また、このインターフェログラムは周期的に表れる。よって、コム 1 とコム 2 のパルスは完全に一致してから  $N'$  番目のコム 1 と  $N' - 1$  番目のコム 2 のパルスで再び一致する。

$$\begin{aligned}\frac{N' - 1}{f_{r,2}} - \frac{N'}{f_{r,1}} &= 0 \\ N' &= \frac{f_{r,1}}{\Delta f_r}\end{aligned}$$

その周期を  $\Delta\tau_r$  とすると

$$\begin{aligned}\Delta\tau_r &= \frac{N'}{f_{r,1}} \\ &= \frac{1}{\Delta f_r}\end{aligned}\quad (3.22)$$

で表せる。すなわち、この方法で  $\Delta\tau_r$  秒間測定を行うと周波数分解能  $f_{r,1}$  のスペクトルを得ることが出来る。

## 特徴

デュアルコム分光法は、以下の 3 つの利点を持っている。

- 広帯域な分子の吸収スペクトルを、高精度かつ高感度に計測が出来る

光周波数コムは広帯域に広がっていて、それぞれの縦モードは位相同期により高精度に周波数が決定されている。また、光周波数コムが単一空間モードであれば、長い相互作用長を得る事が可能で高感度に計測することが出来る。従って、この方法は白色光源を用いた分光法とレーザー分光法の 2 つの利点を持つことになる。また、この利点は光周波数コムを分光光源とした時のものなので、ダイレクト光周波数コム分光法全般にも言える事である。

- 短時間に高分解能計測が可能

例えば、繰り返し周波数を  $f_r = 100$  MHz、繰り返し周波数差を  $\Delta f_r = 1$  kHz とすると、式 (3.22) より 1 ms で 100 MHz の分解能を得る事が出来る。これをフーリエ分光法で得るためには、式 (3.7) より可動鏡を  $3 \times 10^3$  m/s の速度\* で 3 m の移動をする必要があり、これは現実には不可能な値となる。従って、デュアルコム分光法では可動鏡を用いないため、フーリエ分光法では実現不可能だった高速な測定が可能となる。

- 測定可能な波長領域に制限が少ない

分散分光法では、それぞれのスペクトルを CCD カメラを用いて測定している。そのため、CCD カメラの波長帯域（近赤外領域より短波長側）のみしか測定できないという制限がある。それに対して、デュアルコム分光法は単一光検出器で全てのスペクトルを測定する事が出来るので波長依存性が少ない。

今まで説明では、2 台の光周波数コムの各モードの周波数と位相の揺らぎは無視してきたが、実際にはこの揺らぎが非常に問題となる。例えば、相対線幅（ビート信号の線幅） $\delta f_{r,width}$  が繰り返し周波数差（ビート信号の間隔） $\Delta f_r$  よりも大きいと図 3.9 に示したようにエイリアシングが起きてしまう。そのため、個々のモードを分離することが出来なくなり、分解能が低下する。よって、相対線幅  $\delta f_{r,width}$  は

$$\delta f_{r,width} \ll \Delta f_r \quad (3.23)$$

の条件を満たすようにしなければならない。また、この方法で SN 比を向上するためには、コヒーレントに信号を積算する必要がある。積算時間は、2 台のコムのコヒーレンス性が保たれている時間、つまり相対線幅の逆数で与えられる。よって、SN 比をより向上させるためには積算時間を長く、つまり相対線幅をより狭くする必要がある。

相対線幅を狭めるためには、2 台のコムを高精度に位相同期する必要がある。しかし、この位相同期は一般的には簡単な技術ではない。これがデュアルコム分光法を実用的にする大きな問題点となっている。そこで、我々はこの問題点を解決するために、電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法の研究を行った。

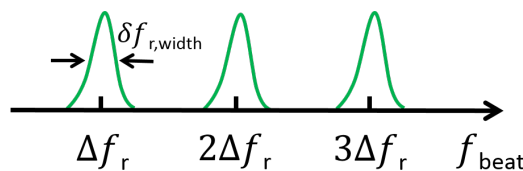


図 3.8  $\delta f_{r,width} \ll \Delta f_r$  時のビート信号

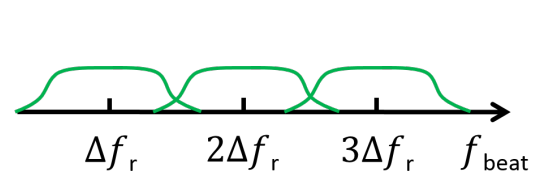


図 3.9  $\delta f_{r,width} > \Delta f_r$  時のビート信号

\* 音速は約 330 m/s



## 第4章 電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法

本研究では、主に次の3つの実験について行った。1つ目は電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光を行った時に発生した、ビート信号の振幅揺らぎの原因とその解決法についてである。2つ目は、この解決法を用いて行ったアセチレン分子の吸収分光測定と積算による感度の向上についてである。3つ目は、今まで用いていたビート信号の振幅揺らぎの解決法とは別の方法である光路長安定化による方法についてである。本章では、電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法の概要とこれらの実験結果について述べる。

### 4.1 電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法の概要

我々は3.2節で述べた問題点である、2台の光周波数コムの繰り返し周波数とオフセット周波数の高精度な位相同期を不要にするために、従来のモードロックレーザーに代わって電気光学変調器型光周波数コムを用いてデュアルコム分光を行った。この方法の概略図を図4.1に示す。図4.1からわかるように、2台の電気光学 (Electro-Optic Modulator:EOM) 型光周波数コムは共通のマスターレーザー  $f_0$  (CW レーザー) から発

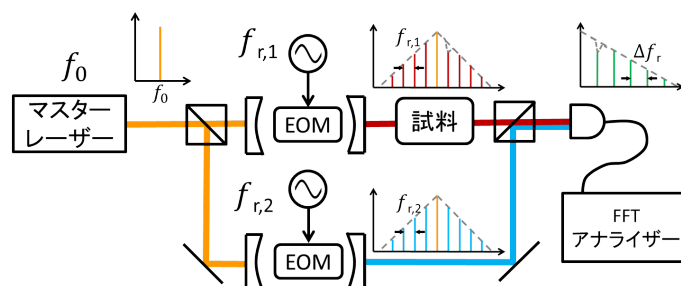


図 4.1 EOM 型コムを用いたデュアルコム分光法の概略図

生しているため、オフセット周波数が共通で繰り返し周波数が異なる対称なスペクトル（式 (2.51) で表されるような）が得られる。それぞれの各縦モードは

$$f_{1,n} = f_0 + n f_{r,1} \quad (4.1)$$

$$f_{2,m} = f_0 + m f_{r,2} \quad (4.2)$$

で表される。ここで、 $f_{r,1}$ 、 $f_{r,2}$  はそれぞれ発振器からの変調周波数である。また、光検出器と FFT(高速フーリエ変換: Fast Fourier Transform) アナライザーを用いて測定される各ビート信号は

$$\begin{aligned} \Delta f_{\text{beat},p} &= f_{1,n} - f_{2,m} \\ &= p \Delta f_r \end{aligned} \quad (4.3)$$

となる。ここで、 $p = n = m$  とし、 $n \neq m$  の項は無視し、繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  は  $\Delta f_r = f_{r,1} - f_{r,2} > 0$  とする。

式 (4.3) からわかるように、測定されるビート信号は 2 台の発振器のみで決定され、マスターレーザーの周波数に依存しない。また、この 2 台の発振器の同期は基準発振器 (Rb 原子時計: 10 MHz) を用いる事で簡単に制御できる。従って、この方法は高精度な位相同期が不要で簡便になる。ただし、電気光学変調器型光周波数コムはマスターレーザー周波数が共振器の共振周波数に一致するように共振器長を制御している。しかし、この制御は光位相同期ではないので比較的簡単に行う事が出来る。また、この方法は参考文献 [25, 38] のように別のレーザーも用意する必要がないので、構成全体の小型化も可能である。

しかし、この方法は光源に電気光学変調器型光周波数コムを用いるため、次に示す 3 点が問題になると考えられる。まず 1 つ目は、2.2.2 節で述べたようにパルスのピークパワーが入射平均パワーとなので平均パワーが低く (数百  $\mu\text{W}$ ) なる事である。そのため、信号に対する検出器の雑音が大きくなり、S/N 比を高くする事が難しくなる。また、各縦モードは次数が増加するにつれて指数関数的に減少するのでダイナミックレンジも問題となる。2 つ目は、得られるスペクトル幅が数 THz 程度なので広い範囲の吸収スペクトルを測定する事が困難である事である。この 1 つ目と 2 つ目の問題点は光増幅器を用いる事で、ある程度解決できる。3 つ目の問題点としては繰り返し周波数が高い (数 GHz) 事が挙げられる。例えば、アセチレンの吸収線の線幅は数百 MHz なのに対して、今回用いている電気光学変調器型光周波数コムの繰り返し周波数は 6.25 GHz である。そのため、図 4.2 の (b) に示したように測定できない吸収線が存在する。しかし、マスターレーザーは簡単に周波数を掃引することが出来るので間のスペクトルは簡単に調べることが出来る。また、今回は実験を行わなかったが、ファイバブラッググレーティング (Fiber Bragg Grating: FBG) などの吸収スペクトル線幅が広い測定物を測定する時には全く問題とならない。

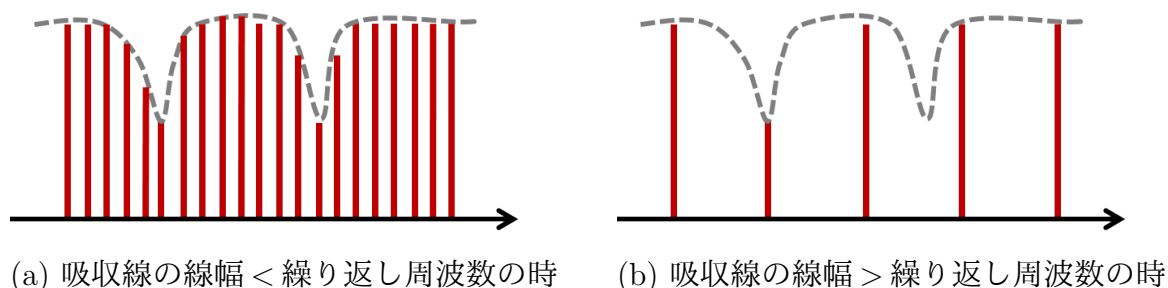


図 4.2 吸収線の線幅と繰り返し周波数の関係

#### 4.1.1 構成について

次に、電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光法の構成について説明する。本実験の構成を図 4.3 に示した。マスターレーザーは、本研究室で作成された外部共振器型半導体レーザー (External Cavity Laser Diode:ECLD) を用いた。このレーザーの波長は 1540 nm 付近に設定した。電気光学変調器型光周波数コム（光周波数コム発生器）は光コム社製を用いた。ただし、この光周波数コムの電気光学結晶には  $\text{LiNbO}_3$ （ニオブ酸リチウム）が用いられている。また、この光周波数コムは変調周波数（繰り返し周波数）が 6.25 GHz 付近になった時に最もスペクトルが広がる。

実際には、図 4.3 に示したように電気光学変調器型光周波数コムは光アンプで増幅された光（約 200 mW）が入射される。ここで、電気光学変調器は偏光依存性があるので、ファイバーと光アンプ（IPG laser 社製 EAD-23-C-PM、Keopsys 社製 KPS-BT2-C-33-PB-FA）は偏波保持の物を使用した。また、出力光パワーも数百  $\mu\text{W}$  と非

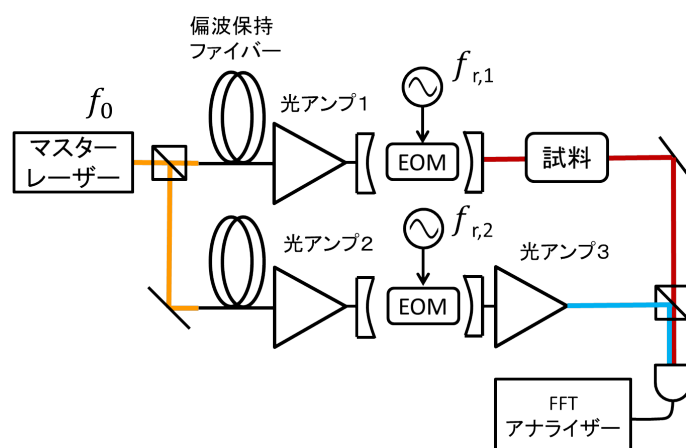


図 4.3 EOM 型コムを用いたデュアルコム分光法の構成図

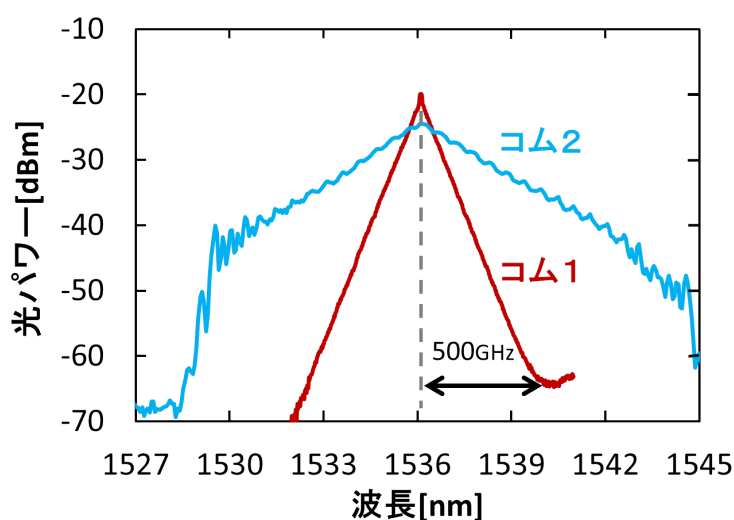
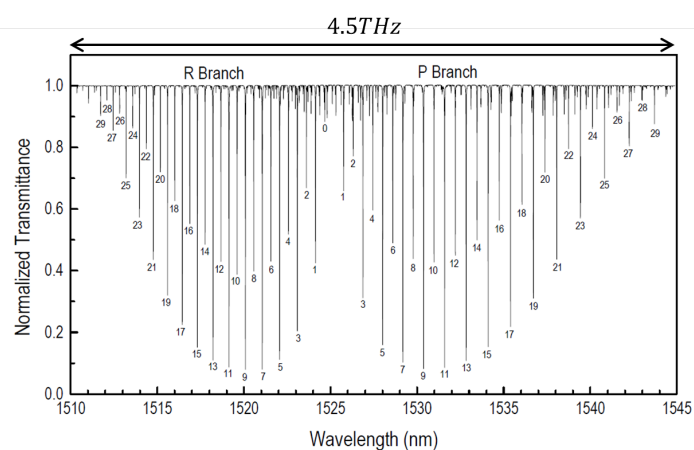


図 4.4 電気光学変調器型光周波数コムのスペクトル

常に低く、そのままでは光検出器の雑音が大きく信号が測定出来ない。そこで、コム 2 の光を光アンプ (PriTel 社製 FA-15) を用いて約 20 mW まで増幅して実験を行った。ただし、この方法はヘテロダイン検波の一種なので、片方の光を増幅するだけで光検出器の雑音（熱雑音）の影響をある程度減少させる事が可能である [27]。

図 4.4(図 2.9) に電気光学変調器型光周波数コムから出力されたスペクトル（コム 2 は光アンプに入射する前の光）を示した。このスペクトルは光スペクトラムアナライザ (Anritsu 社製 MS9710C) を用いて測定した。ここで、コム 1 のスペクトルがコ

図 4.5 アセチレン ( $^{12}\text{C}_2\text{H}_2$ ) の  $1.5\ \mu\text{m}$  帯吸収スペクトル [41]

ム 2 に比べてスペクトル幅が狭いが、これは導波路部分の調整が完全ではないため、発振器からのマイクロ波のカップリングの効率が低下したためである。

本研究の試料は、近赤外に吸収スペクトルがあるアセチレン ( $^{12}\text{C}_2\text{H}_2$ ) を選択した。このスペクトルはよく調べられており [40]、典型的なアセチレンのスペクトルを図 4.5 に示した [41]。このアセチレンは、図 4.6 に示したような端面がブリュースター角になっているガラスセル（約 20 cm）内に、約 10 Torr の圧力で封じ込められている。

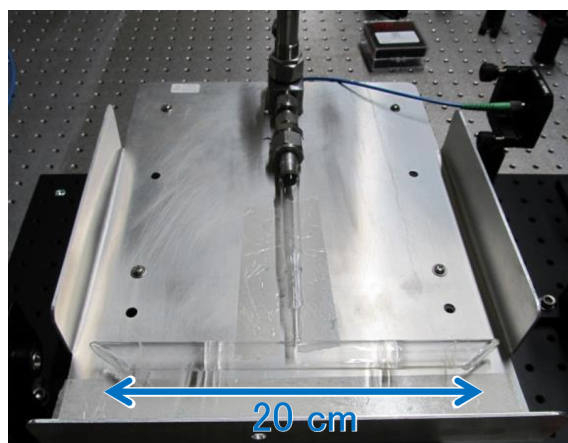


図 4.6 ガラスセル

## 4.2 ビート信号の振幅揺らぎ

我々は、まず初めに図 4.3 と同様な構成でビート信号を測定した。ただし、この時試料は入れないで、ビート信号のスペクトルもスペクトラムアナライザー (Anritsu 社製 MS2661C) で測定した。ここで、繰り返し周波数差を  $\Delta f_r = 150 \text{ kHz}$  に設定した時のビート信号を図 4.7 の (a)、(b) に示した。図 4.7 の (a) から測定できたビート信号のスペクトル幅  $\Delta f_{\text{beat}}$  は約 14 MHz である。これを光の周波数  $\nu_{\text{comb}}$  に変換すると

$$\begin{aligned} \nu_{\text{comb}} &= \frac{f_{r,1}}{\Delta f_r} \Delta f_{\text{beat}} \\ &= \frac{6.25 \times 10^9}{150 \times 10^3} \times 14 \times 10^6 \\ &\simeq 580 \text{ GHz} \end{aligned}$$

になる。従って、図 4.4 で示した全てスペクトルを測定する事が出来た。また、この信号がビート信号である事を確かめるために、図 4.7 の (a) の 4 MHz 付近を拡大した

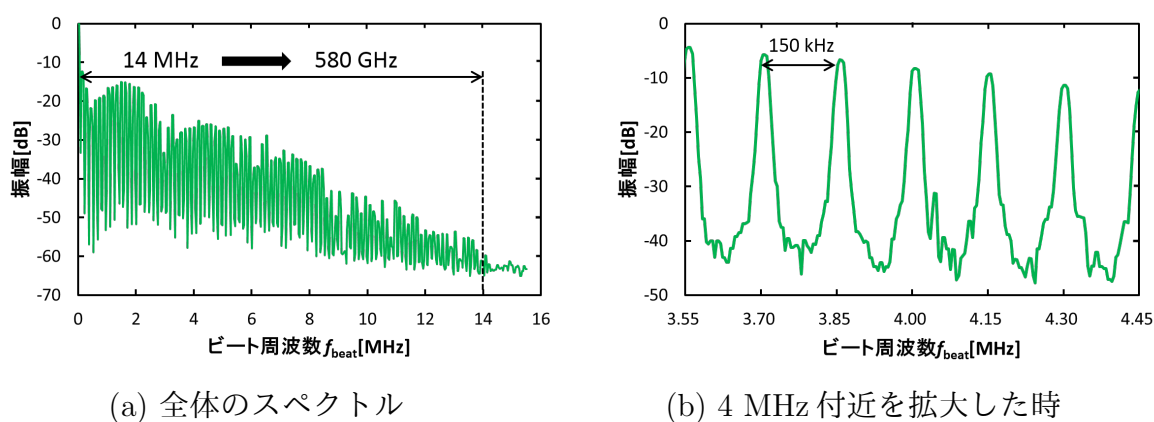


図 4.7 ビート信号のスペクトル

結果が (b) である。その結果、ビート信号は設定した繰り返し周波数差 150 kHz の間隔で現れていた。よって、測定された信号はビート信号である事も確認出来た。以上の結果から、モードロックレーザーの代わりに電気光学変調器型光周波数コムを用いても同様にデュアルコム分光が行える事を確認する事が出来た。

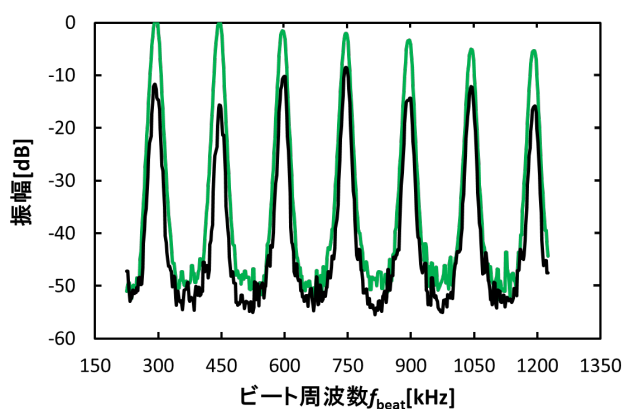


図 4.8 ビート信号の振幅の時間変化

しかし、この測定されたビート信号は図 4.8 に示したように時間によって振幅が変化していた。ここで、緑と黒の実線はビート信号の時間による振幅の変化を示している。この振幅変化は数秒間で約 20 dB 変化していた。そのため、このままでは吸収信号の変化よりもビート信号の振幅変化の方が大きいため、吸収信号の変化を測定する事が出来ない。この問題を解決するために、次節のような考察を行い改善方法を模索した。

## 4.2.1 ビート信号の振幅揺らぎの原因

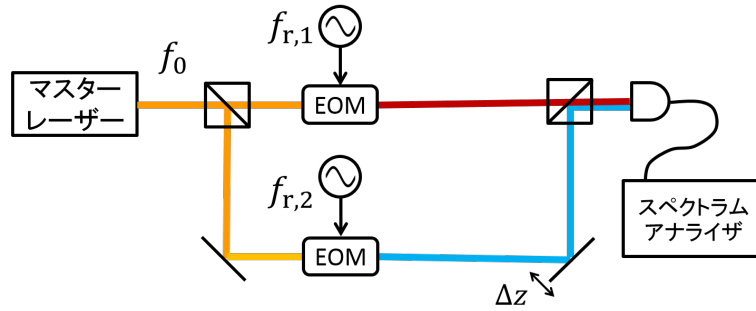


図 4.9 EOM型コムを用いたデュアルコム分光法はマッハツェンダー干渉計に類似

我々は、初め図 4.3 に光のフィルターがない事からもわかるように、ビート信号を観測するのみならエイリアシング (3.2 節) の効果は無視できると考えていた。なぜなら、エイリアシングの効果によりビート信号がコムの縦モードに一对一の関係にならないとしても、光周波数コムの光強度が揺らがない限り、ビート信号の振幅に影響がないと考えたからである。また、測定器であるスペクトラムアナライザは振幅の絶対値のみを測定するので、位相の揺らぎも関係ないと考えていた。そこで、光周波数コムの光強度の時間変化を測定したが、数十パーセントの小さな揺らぎは存在したが、ビート信号の振幅揺らぎ (20 dB: 振幅が 1/10 になる揺らぎ) のような大きな揺らぎは存在しなかった。

この問題を解決するためのヒントとなったのが、光学系のアライメントをしている時の干渉縞だった。この時のアライメントでは、マスターレーザーのみを用いて行っていた\*ののだが、光学系がマッハツェンダー型干渉計になっていた事で干渉縞が見えてしまった。この事から、電気光学変調器型光周波数コムを用いたデュアルコム分光でも同様に干渉が見えているのではないかと考えた。なぜなら、この方法は図 4.9 に示したようにマッハツェンダー干渉計の光路の途中にそれぞれ電気光学変調器を入れたと考える事が出来るからである。

次に、図 4.9 を用いて、ビート信号の振幅揺らぎについて考える。ここでは、簡単化のため共振器は無視した。図 4.9 の片側の光路に  $\Delta z$  の光路長変化があるとすると、それぞれの縦モードの位相の変化  $\Delta\varphi$  は

$$\begin{aligned}
 \Delta\varphi &= k_m \Delta z \\
 &= \left( \frac{\omega_0}{c} + m \frac{\omega_{r,2}}{c} \right) \Delta z \\
 &= \varphi_0 + m\varphi_{r,2}
 \end{aligned} \tag{4.4}$$

\* マスターレーザー光だけを用いたのは、光周波数コムからの出力光ではパワーが弱すぎてアライメントが難しかったからである。また、このアライメントはビート信号を測定するためのオーバーラップである。

となり、オフセット周波数に依存する光路長変化  $\varphi_0$  と繰り返し周波数に依存する光路長変化  $\varphi_{r,2}$  で表される。ここで、 $\omega_0$  はオフセット角周波数、 $\omega_{r,2}$  はコム 2 の繰り返し角周波数である。

従って、2 台の光周波数コムからは光路長変化による位相変化の項を含んだ、次式のような電場が発生する。ここで、電気光学変調器の変調指数は非常に大きいとし、無限個のサイドバンドが発生すると仮定する。

$$E_1(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} C_n \exp [j\{(\omega_0 + n\omega_{r,1})t + \varphi'_0 + n\varphi_{r,1}\}] \quad (4.5)$$

$$E_2(t) = \sum_{m=-\infty}^{\infty} C_m \exp [j\{(\omega_0 + m\omega_{r,2})t + \varphi_0 + m\varphi_{r,2}\}] \quad (4.6)$$

この電場から光検出器で検出される電圧  $V(t)$  を求めると

$$\begin{aligned} V(t) &\propto |E_1 + E_2|^2 \\ &= |E_1|^2 + |E_2|^2 + |E_1 E_2^* + E_1^* E_2| \end{aligned} \quad (4.7)$$

なる。ビート信号成分は、式 (4.7) の 3 番目の項なので、この項のみを考えると

$$\begin{aligned} V_{\text{beat}}(t) &= |E_1 E_2^* + E_1^* E_2| \\ &= \sum_{p=-\infty}^{\infty} |C_p|^2 \exp [j(p\Delta\omega_r t + \Delta\varphi_0 + p\Delta\varphi_r)] \\ &\quad + |C_p|^2 \exp [-j(p\Delta\omega_r t + \Delta\varphi_0 + p\Delta\varphi_r)] \\ &= 2 \sum_{p=-\infty}^{\infty} |C_p|^2 \cos(p\Delta\omega_r t + \Delta\varphi_0 + p\Delta\varphi_r) \\ &= 2 \sum_{p=0}^{\infty} |C_p|^2 \cos(p\Delta\omega_r t + \Delta\varphi_0 + p\Delta\varphi_r) \\ &\quad + |C_{-p}|^2 \cos(p\Delta\omega_r t - \Delta\varphi_0 + p\Delta\varphi_r) \end{aligned} \quad (4.8)$$

で表される。ただし、 $p = n = m$  として、 $C_n \simeq C_m$  とする。ここで、 $n \neq m$  の項は無視する。また、 $\Delta\omega_r = \omega_{r,1} - \omega_{r,2} > 0$ 、 $\Delta\varphi_0 = \varphi'_0 - \varphi_0 \geq 0$ 、 $\Delta\varphi_r = \varphi_{r,1} - \varphi_{r,2} \geq 0$  とする。この式 (4.8) の第 1 項はサイドバンドの正側を、第 2 項は負側を表している。従って、各ビート信号はエイリアシングの現象と同様に 2 つの縦モードの成分を含む事になる (図 4.10)。ここで、重要な点はオフセット周波数に依存する位相項  $\Delta\varphi_0$  が正負のサイドバンドで符号が反転している点である。従って、式 (4.8) は

$$V_{\text{beat}}(t) = 4 \sum_{p=0}^{\infty} |C_p|^2 \cos(\Delta\varphi_0) \cos(p\Delta\omega_r t + p\Delta\varphi_r) \quad (4.9)$$



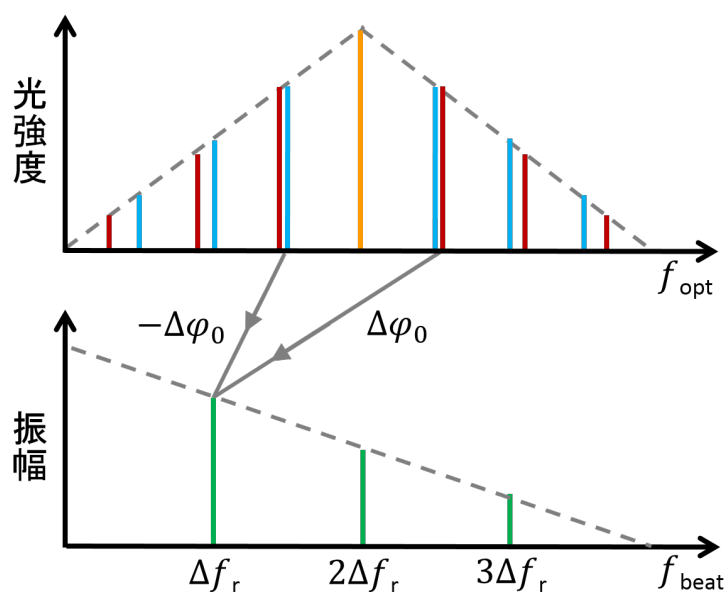


図 4.10 2つのビート信号間の干渉

と書き直せる。ただし、電気光学変調器型光周波数コムはオフセット周波数に対して対称のスペクトルを得られるので、 $|C_p| = |C_{-p}|$  とする。式 (4.9) からわかるように  $p\Delta\omega_r t$  の振幅成分に  $\cos(\Delta\varphi_0)$  が表れている。これがビート信号の振幅に揺らぎを与えている。つまり、ビート信号の振幅揺らぎは、正負のサイドバンドのビート信号同士が干渉する\*事で起きていた (図 4.10)。

#### 4.2.2 ビート信号の振幅揺らぎの低減

4.2.1 節ではビート信号の振幅揺らぎの原因について考察した。ここでは、このビート信号の振幅揺らぎの低減方法についてとその実験結果について述べる。

我々は、ビート信号の振幅揺らぎの低減方法として次の2つの方法考えた。1つ目は、一方の光路に遅延ファイバーを入れる方法である (図 4.11 の (a))。ビート信号の振幅揺らぎは、正負のサイドバンドのビート信号同士が干渉する事で起きていたので、一方の光路にコヒーレンス長よりも長い遅延を入れる事で干渉をなくす事ができる。これは、式 (4.9) の振幅成分を平均化して測定する事に対応する。

2つ目は、光バンドパスフィルターを用いる方法である。ビート信号の振幅揺らぎはエイリアシングによって起きていたと考える事もできる。そのため、光バンドパスフィルターを用いる事でこのエイリアシングをなくす事ができる (3.2 節)。これは、

---

\* この干渉はオフセット周波数の光路長に依存して起きる。

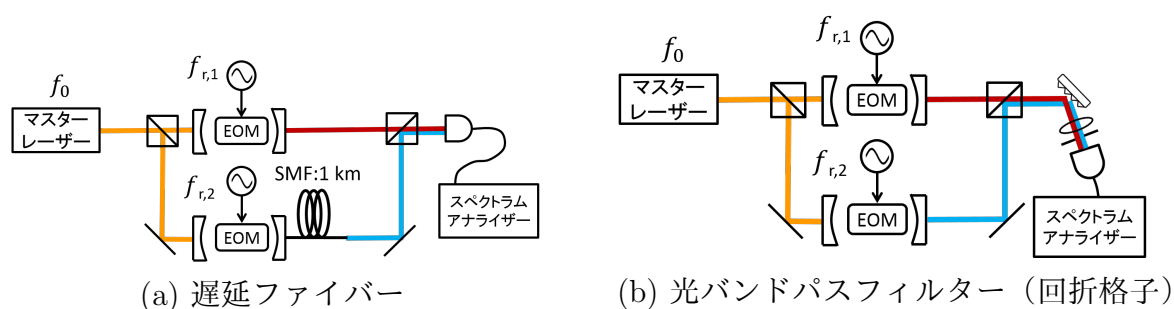


図 4.11 ビート信号の振幅揺らぎの低減方法

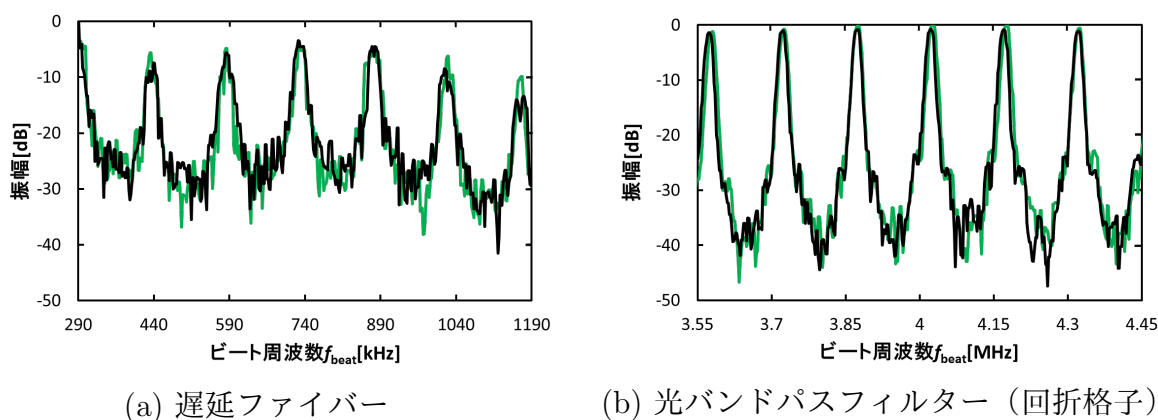


図 4.12 振幅揺らぎを低減した時のビート信号

式 (4.8) の第 1 項または第 2 項を取り除く事に対応する。我々は光バンドパスフィルターとして回折格子を用いる事で、この方法を実現した（図 4.11 の (b)）。

図 4.12 に、それぞれの低減方法を用いた時のビート信号を示した。ここで、緑と黒の実線はビート信号の振幅の時間変化を示している。これらの結果より、どちらの方法でも振幅の揺らぎを抑える事ができる事がわかった。しかし、図 4.12 の (a) と (b) のビート信号の SN 比を比較すると、同じ周波数分解能（10 kHz）で測定したにも関わらず、遅延ファイバーを用いた方法 (a) の方が SN 比が悪くなっていた。これは、遅延ファイバーを用いた事で増加した距離に依存する揺らぎの影響である。

これらの実験結果より、次に行う吸収信号の測定では光バンドパスフィルターを用いた方法を採用した。

### 4.3 アセチレン分子の吸収スペクトルの観測

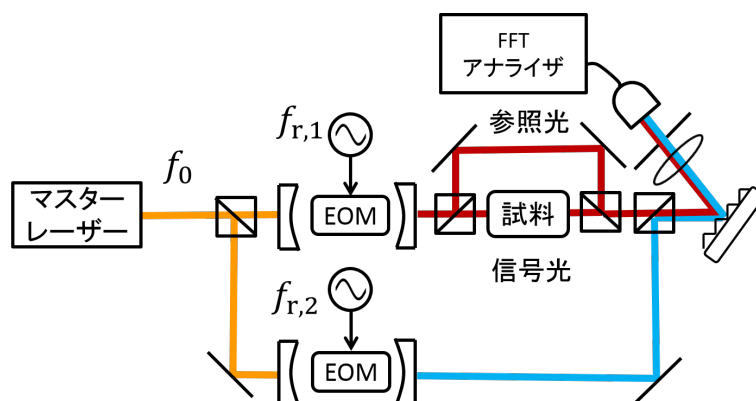


図 4.13 吸収スペクトルを測定するための構成図

次に、アセチレン分子の吸収スペクトルを観測するために図 4.13 の構成で実験を行った。繰り返し周波数差は 1 kHz とし、FFT アナライザに東洋テクニカ社製の DT9847 (測定帯域 100 kHz) を用いた。ここでは、光バンドパスフィルター (回折格子) のスペクトルを取り除くために、試料を通る光路 (信号光) と試料を通さない光路 (参照光) の 2 つの信号を測定した。本実験の測定では、参考文献 [42] のような時分割測定とは異なり光路ごとに光を毎回遮って別々の時間で測定する方法を用いた。

マスターレーザーの周波数を 195.1293 THz (波長:1536.378 nm) に設定した時の測定結果を図 4.14 に示した。ここで、矢印はアセチレン分子の各吸収線の周波数の位置を示している。図 4.14 の (a) の信号光と参照光は、共に同じような包絡線を描いてい

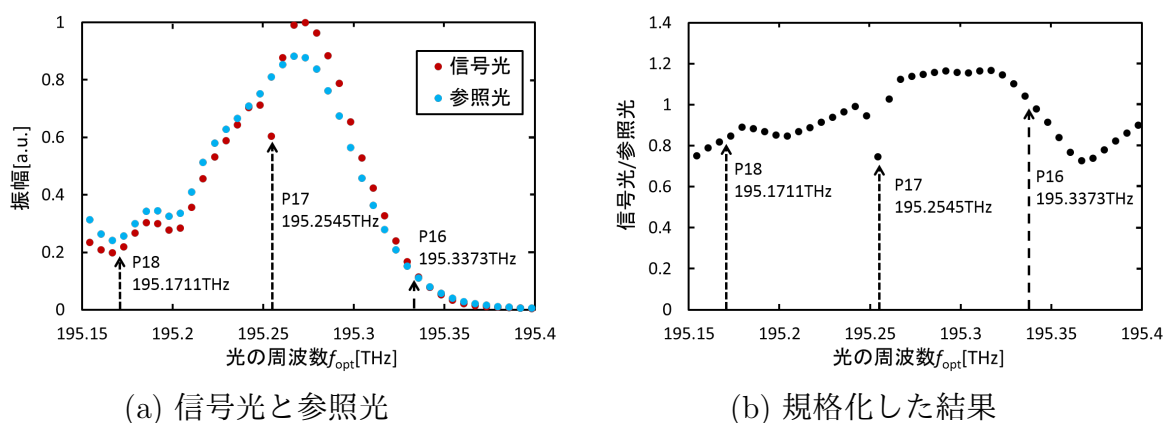


図 4.14 アセチレン分子の吸収スペクトル

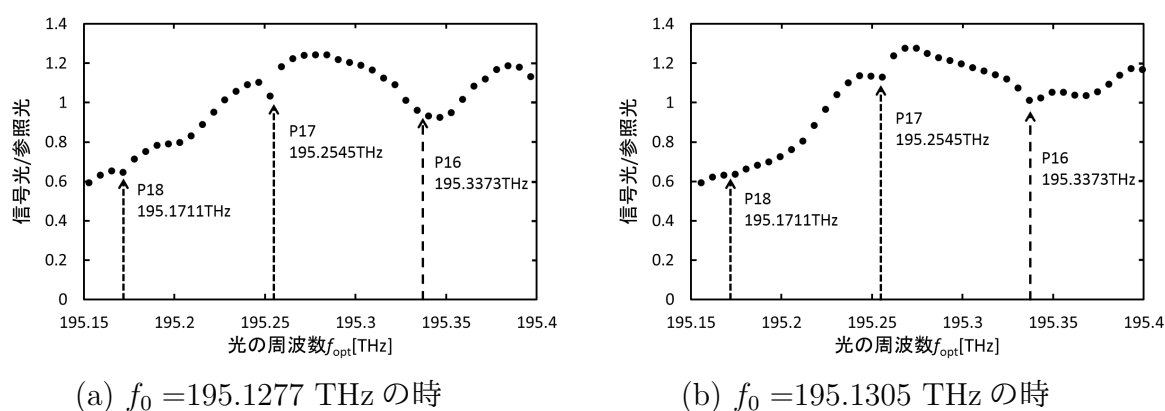


図 4.15 マスターレーザー掃引時の吸収スペクトル

るが、これは回折格子による光バンドパスフィルターのスペクトルである。この光バンドパスフィルターの効果を取り除くために、信号光と参照光の比を取った結果が図 4.14 の (b) である。その結果、P17 の吸収線を測定することが出来た。しかし、P18 と P16 の吸収線は測定出来なかった。これは、吸収線が光周波数コムの縦モードの間に存在するためである (図 4.2 の (b))。また、図 4.14 の (b) では吸収線のない領域でも振幅に変化があるが、これは光学系の調整の問題 (エタロンの効果等) や光周波数コムの光強度の時間変化などの影響である。

次に、縦モードの間に存在するスペクトルを測定するために、マスターレーザーの掃引を行った。図 4.15 の (a) にマスターレーザーの周波数  $f_0$  を 195.1277 THz (波長:1536.391 nm) に掃引した時の結果を、図 4.15 の (b) に  $f_0$  を 195.1305 THz (波長:1536.369 nm) にした時の結果を示した。図 4.15 の (a) では、P17 の吸収線は共鳴から外れたことに

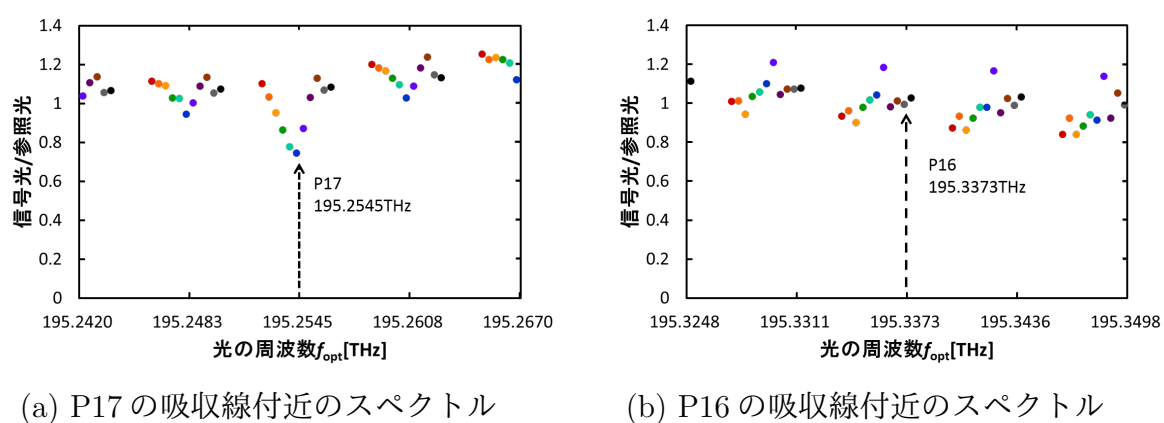


図 4.16 マスターレーザーを掃引したときの各吸収線のスペクトル

より吸収が減少したが、P18 の吸収線を測定することが出来た。また、図 4.15 の (b) では P16 の吸収線を測定する事が出来た。

図 4.16 に、マスターレーザーの周波数  $f_0$  を 195.1274 THz (波長:1536.394 nm) から 0.39 GHz 毎に周波数を掃引した時の結果を示した。ここで、色が等しい点は一回の測定でのそれぞれのコムの縦モードである。図 4.16 の (a) では、P17 の吸収線のスペクトル形状が測定出来た。しかし、図 4.16 の (b) では一回一回の測定の揺らぎが大きく P16 の吸収線のスペクトル形状を測定する事が出来なかった。また、P18 の吸収線も同様の理由で測定する事が出来なかった。次に、これらの時間的な強度変化を取り除くために信号光と参照光の同時測定を行った。また、積算による感度の向上についても調べた。

### 4.3.1 積算による感度向上

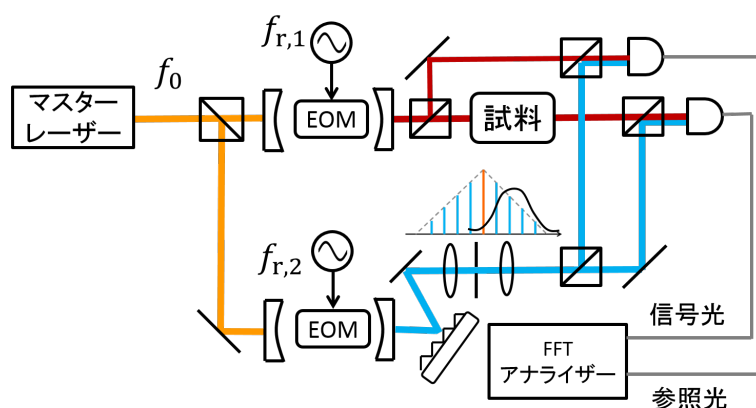


図 4.17 積算による感度向上の構成図

我々は、図 4.17 のような構成で信号光と参照光の同時測定と積算を行い、アセチレン分子の吸収スペクトルの感度の向上を目指した。ただし、繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  は 100 kHz に設定した。ここで、図 4.17 は図 4.13 と異なり回折格子による光バンドパスフィルターが光をオーバーラップする前に配置されている。これは信号光と参照光のアライメントの違いによる光バンドパスフィルターのスペクトルの違いを防ぐためである。また、データの取得は高速なサンプリングが可能なデジタイザ (National Instruments 社製 NI5733、最大サンプリング周波数: 120 MHz) を用いて行った。このデジタイザには FPGA (Field-Programmable Gate Array) が内蔵されており、時間軸上のデータの取得だけではなく FFT と積算がリアルタイムに可能である\*。しか

\*FPGA 上での FFT 実行時間について

FPGA 上で実行出来る最大長の FFT は 65536 サンプルである。この 65536 サンプルの FFT を FPGA 上で行うために必要なクロック数は 655622 クロックである。FPGA のクロックスピードが 120 MHz なので  $\frac{1}{120 \times 10^6} \times 655622 = 5.46 \text{ ms}$  で FFT を実行する事が出来る。

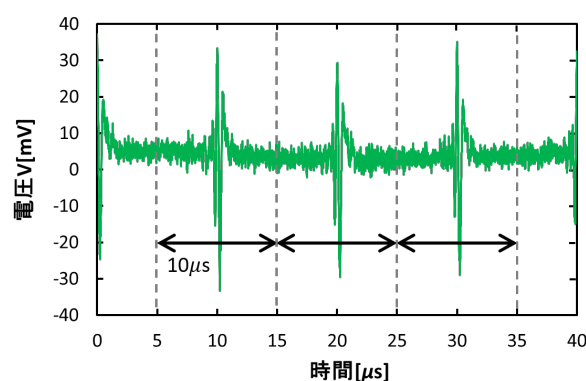
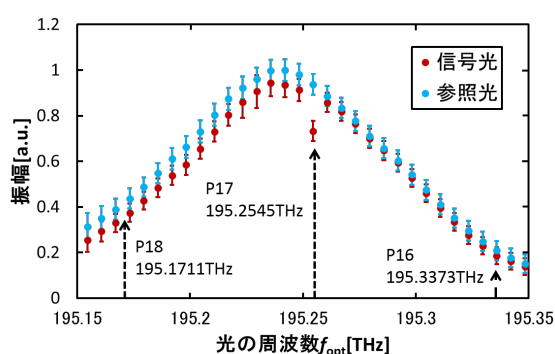


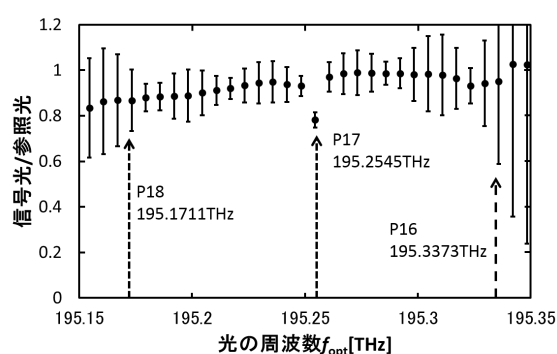
図 4.18 インターフェログラム

し、今回の実験ではFPGAを用いてのリアルタイムFFTは実行せず、2ch（信号光と参照光）データの取得（図4.18）のみを行った。そして、FFTと積算はデータ取得が終了してからMATLABを用いて行った。

まず初めに、光周波数コムの個々の縦モードを分割するのに必要最低限の時間（ $1/\Delta f_r = 10 \mu s$ ）でのアセチレン分子の吸収スペクトルの結果を図4.19に示した。ここで、エラーバーは標準偏差の値である。その結果、P17の吸収線は測定出来たが、P16、P18の吸収線は揺らぎが大きく測定出来なかった。次に、このP16、P18の吸収線を測定するために積算を行い感度の向上を目指した。本実験で感度の向上が期待される最大積算時間（3.2節）は、図4.20のビート信号の線幅（相対線幅）の逆数から2 ms(=1/500)である。ただし、図4.20はスペクトラムアナライザーを用いて測定を行った。本実験の積算方法は、デジタイザで取得した時間軸データ（図4.18）をインターフェログラ



(a) 信号光と参照光



(b) 規格化した結果

図 4.19 アセチレン分子の吸収スペクトル（測定時間：0.01 ms）

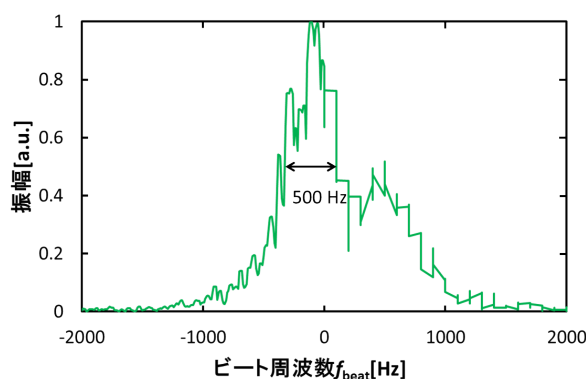
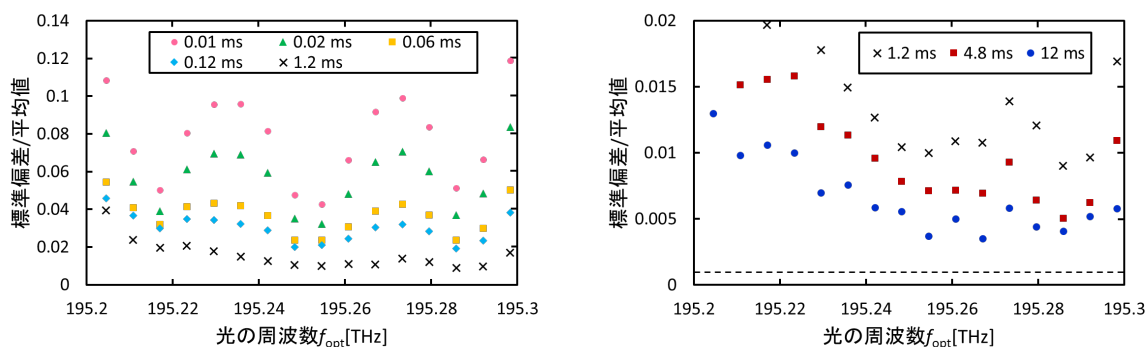


図 4.20 相対線幅（モード次数:10 番目、分解能:100 Hz）



(a) 0.01 ms から 1.2 ms まで

(b) 1.2 ms から 12 ms まで

図 4.21 積算時間を増加させた時の標準偏差/平均値の変化

ム（繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  の逆数： $1/\Delta f_r = 10 \mu\text{s}$ ）毎に分割して平均化する方法である。

積算時間を増加させる事によって感度が（規格化した結果の標準偏差/平均値の値）が向上する様子を図 4.21 に示した。ここで、積算時間は平均化したインターフェログラム数/繰り返し周波数差である。その結果、測定時間 0.01 ms で約  $9 \times 10^{-2}$  の感度から 12 ms の積算時間で約  $5 \times 10^{-3}$  の感度に向上する事が出来た。また、相対線幅（図 4.20）から見積もられる時間（2 ms）以上の積算時間（12 ms）で感度向上を得る事も出来た。これは、実際の相対線幅が図 4.20 よりも狭い事を示している。ここで、図 4.21 の (b) の点線は光周波数コムの光パワーから見積もられる SN 比（Signal to Noise ratio、ショット雑音と熱雑音を含んだ）を示している。この SN 比 [27] は、コム 1 のパワー： $13.9 \mu\text{W}$ 、コム 2 のパワー： $300 \mu\text{W}$ 、暗電流  $j_d$ : $0.15 \text{ nA}$ 、抵抗  $R$ : $50 \Omega$ 、帯域



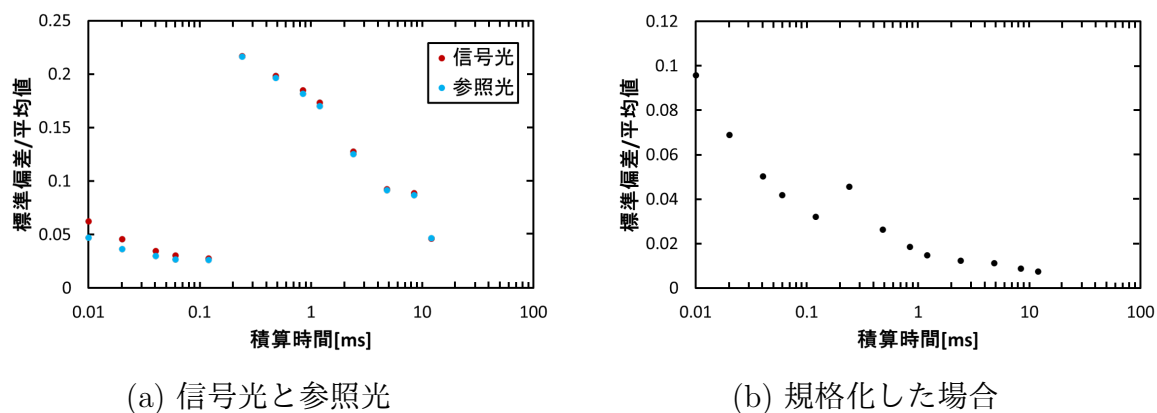


図 4.22 モード次数 19 番目の積算時間を増加させた時の標準偏差/平均値の変化

B:100 kHz より

$$\text{SNR} = \sqrt{\frac{2(\eta e / \hbar \omega) P_s P_l}{2e(\eta e P_l / \hbar \omega + j_d) B + 4k_B T B / R}} \simeq 1227 \quad (4.10)$$

である。ただし、この値は中心のモードパワーについて考えたので、 $P_s$ 、 $P_l$  は全体のパワーに 0.624 の係数を掛けて計算した。従って、12 ms の積算ではまだ雑音レベルの限界に到達していない。

次に、積算時間による感度の変化をより詳しく調べるために、モード次数 19 番目の積算時間による標準偏差/平均値の変化の様子を図 4.22 に示した。その結果、0.24 ms の積算で標準偏差/平均値の値が増加していた。これは時間軸上のデータ取得 を 0.12

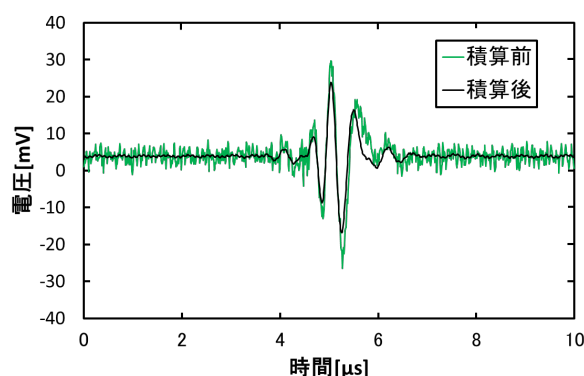


図 4.23 積算前後のインターフェログラム (積算前:0.01 ms、積算後:12 ms)



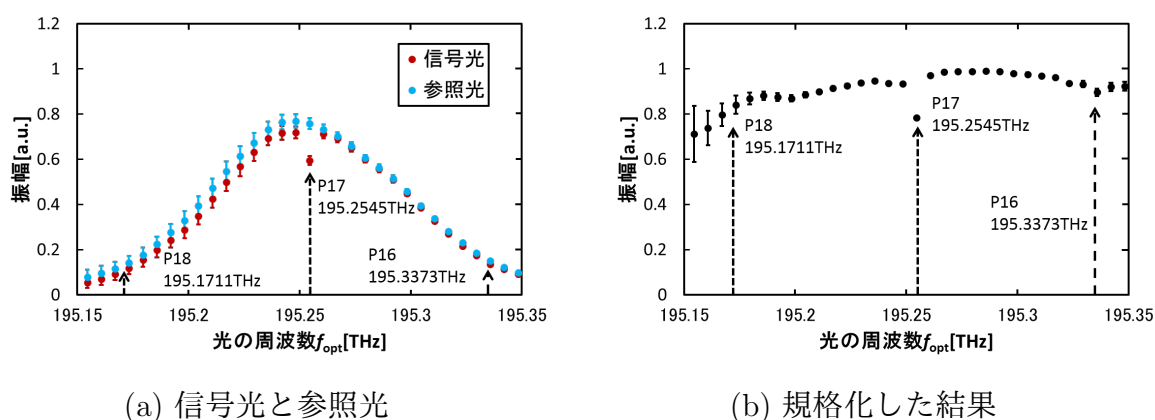


図 4.24 積算後のアセチレン分子の吸収スペクトル (測定時間: 12 ms)

ms 毎 (インターフェログラムをトリガー) に行った影響である。そのため、0.12 ms を超える積算を実行するとインコヒーレントな積算になり揺らぎが増加する。しかし、このインコヒーレントな積算の影響は信号光と参照光の比を取る事で抑える事が出来た (図 4.22 の (b))。

図 4.21 で最大の感度が得られた積算時間 (12 ms) での時間軸上の結果と周波数スペクトルの結果について調べた。図 4.23 に積算前 (測定時間: 0.01 ms) と積算後 (積算時間: 12 ms) のインターフェログラムを示した。その結果、積算を行う事でインターフェログラムの瞬間的な揺らぎを抑制する事が出来た。図 4.24 に、12 ms 間積算を行った後の時間軸データを FFT してスペクトルを測定した結果を示した。その結果、積算前 (図 4.19) は揺らぎが大きく測定出来なかった P16 の吸収線を積算する事で測定出来た。しかし、P18 の吸収線は測定出来なかった。これは、吸収線が光周波数コムの縦モードの間に存在したためである。

次に、この縦モード間のスペクトルを測定するために図 4.16 と同様にマスターレーザーの掃引を行った。ただし、測定結果は 12 ms 間積算を行った後の結果である。ここで、マスターレーザーの周波数  $f_0$  は 195.1271 THz (波長: 1536.396 nm) から 0.3 GHz 毎に 195.1323 THz (波長: 1536.355 nm) まで掃引した。それぞれの色が等しい点は、1 回の測定 (12 ms) での光周波数コムの縦モードを示している。その結果、アセチレン分子 ( $^{12}\text{C}_2\text{H}_2$ ) の 3 本の吸収線 ( $\nu_1 + \nu_3$  帯の P16、P17、P18 の回転線) を測定する事が出来た。しかし、図 4.25 の (d) の低周波数側は値のばらつきが大きい。これは、4.2.1 節で説明した正負のサイドバンドのビート信号同士の干渉の効果を光バンドパスフィルターが抑え切れていないためである。

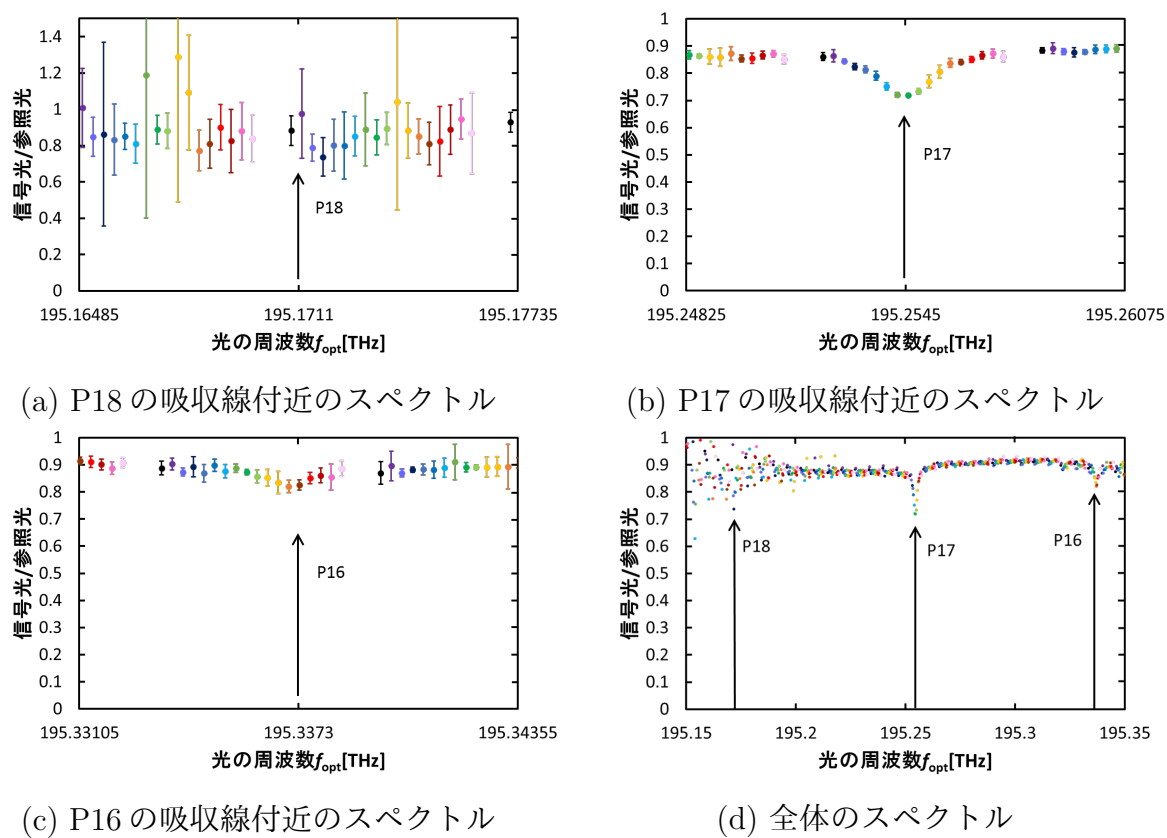


図 4.25 マスターレーザー掃引時の吸収スペクトル (積算時間:12 ms)

## 4.4 光路長安定化によるビート信号の振幅揺らぎの低減

本節では、4.2.2 節で述べた方法とは別の方法でビート信号の振幅揺らぎを抑える方法の提案とその実験結果について述べる。我々は、4.2.1 節のビート信号の振幅揺らぎの原因は 2 台の光周波数コムの光路長の変化であるという結論から、光路長を制御する事でビート信号の揺らぎを抑える方法を考えた。次に、この方法についての説明を行う。

### 4.4.1 光路長安定化の原理

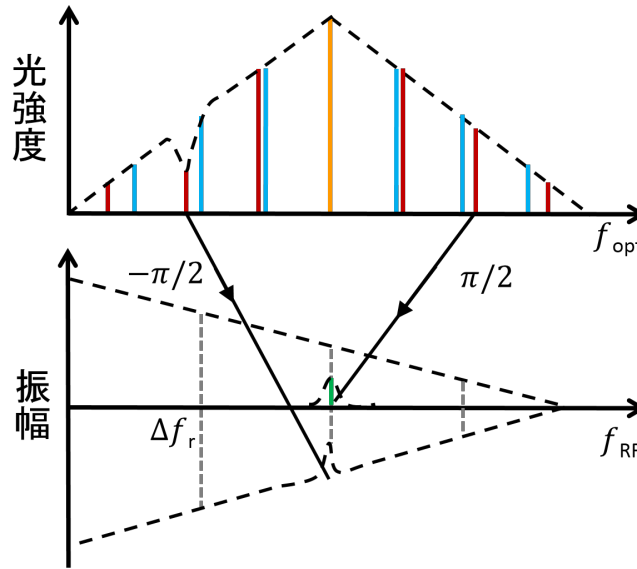


図 4.26 光路長安定化時のビート信号スペクトル

まず、正負のサイドバンドのビート信号同士が干渉した時の式 (4.8) を吸収がある場合 ( $|C_p| \neq |C_{-p}|$ ) について展開すると

$$V_{\text{beat}}(t) = 2 \sum_{p=-\infty}^{\infty} (|C_p|^2 + |C_{-p}|^2) \cos(\Delta\varphi_0) \cos(p\Delta\omega_r t + p\Delta\varphi_r) - (|C_p|^2 - |C_{-p}|^2) \sin(\Delta\varphi_0) \sin(p\Delta\omega_r t + p\Delta\varphi_r) \quad (4.11)$$

なる。ここで、2つの光路差による位相差  $\Delta\varphi_0$  (オフセット周波数) を  $a\pi/2$ 、( $a$ は偶数) になるように光路を制御した場合について考える。この場合、式 (4.11) の第 1 項は

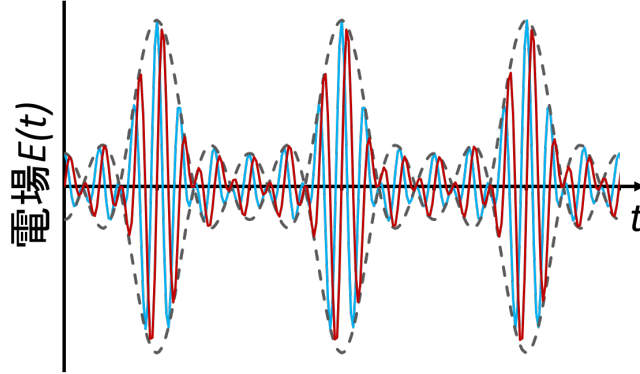


図 4.27 光路長安定化時のビート信号の時間応答

ゼロになり第2項が残る。電気光学変調器型光周波数コムは、対称なスペクトルを持つので吸収が存在しなければ  $|C_p|^2 = |C_{-p}|^2$  である。従って、この条件での各ビート信号の振幅は吸収が存在しない時にゼロになり、吸収が存在する時にはその差分が表れる。この様子を図 4.26 に示した。この図 4.26 より、正側のサイドバンドのビート信号と負側のビート信号では位相が  $\pi$  ずれる。そのため、ビート信号は互いに打ち消し合い吸収が存在しない領域ではゼロになる。

次に、このビート信号がゼロになる様子を時間領域で考える。 $N$  個のモードがオフセット周波数に対して対称に発生し、それぞれの振幅  $C_n = 1/\sqrt{N}$  が等しいと仮定すると光周波数コムの電場  $E(t)$  は

$$\begin{aligned}
 E(t) &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{n=-(N-1)/2}^{(N+1)/2} e^{j(\omega_0 + n\omega_r)t} \\
 &= \text{Re} \left[ \frac{1}{\sqrt{N}} e^{j\omega_0 t} \frac{\sin\left(\frac{N\omega_r}{2}t\right)}{\sin\left(\frac{\omega_r}{2}t\right)} \right] \\
 &= \frac{1}{\sqrt{N}} \cos(\omega_0 t) \frac{\sin\left(\frac{N\omega_r}{2}t\right)}{\sin\left(\frac{\omega_r}{2}t\right)} \quad (4.12)
 \end{aligned}$$

と表せる。コム 2 に時間遅延  $\omega_0\tau = \pi/2$  を加えて、コム 1 とコム 2 のビート信号を求めると式 (4.12) から

$$\begin{aligned}
 V_{\text{beat}}(t) &= 2 \langle E_1(t) E_2(t + \tau) \rangle \\
 &= \frac{2}{N} \langle \cos(\omega_0 t) \sin(\omega_0 t) \rangle \frac{\sin\left(\frac{N\omega_{r,1}}{2}t\right) \sin\left(\frac{N\omega_{r,2}}{2}t\right)}{\sin\left(\frac{\omega_{r,1}}{2}t\right) \sin\left(\frac{\omega_{r,2}}{2}t\right)} \quad (4.13)
 \end{aligned}$$

になる。ここで、 $\langle \rangle$  の時間平均はオフセット周波数より十分大きく、繰り返し周波数よりも十分小さい時間間隔で行うものとする。正弦波と余弦波は直交関係にあるので、 $\langle \cos(\omega_0 t) \sin(\omega_0 t) \rangle = 0$  である。その結果、式 (4.13) はゼロとなりビート信号は測定されなくなる。この様子を図 4.27 に示した。ただし、それぞれの繰り返し周波数の信号は測定される。

この方法を用いると、光周波数コム光源自身を持つ強度揺らぎは打ち消し合う事になる。従って、この原理が実施されれば、FM 分光のような高感度計測を行う事が出来る。そこで、我々は次節でこの方法の原理実証を行った。この実験では、光路長を制御する事でビート信号の振幅揺らぎを抑える事が可能であるのかについてと光路長を制御した時にビート信号の振幅が本当にゼロになるのかについての 2 点について調べた。

#### 4.4.2 光路長安定化の実験系

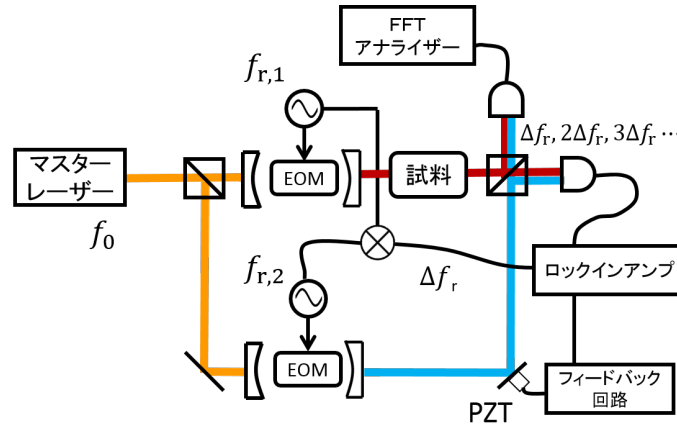


図 4.28 光路長安定化のための実験系

我々は、4.4.1 節の原理実証のために図 4.28 のような構成で実験を行った。ここで、光路長を制御するためには誤差信号となる位相差  $\Delta\varphi_0$  を検出する必要がある。光検出器で測定されるビート信号は、式 (4.11) より

$$V_{\text{beat}}(t) = 2 \sum_{p=-\infty}^{\infty} (|C_p|^2 + |C_{-p}|^2) \cos(\Delta\varphi_0) \cos(p\Delta\omega_r t + p\Delta\varphi_r) - (|C_p|^2 - |C_{-p}|^2) \sin(\Delta\varphi_0) \sin(p\Delta\omega_r t + p\Delta\varphi_r)$$

になる。従って、この第 1 項の振幅成分を測定できれば図 4.29 のような誤差信号を得る

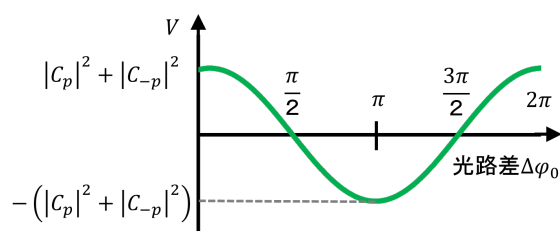
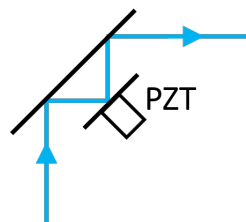
図 4.29  $\Delta\varphi_0$  の理想的な誤差信号

図 4.30 光路長制御のための光学系

事が出来る。この誤差信号を得るためにロックインアンプ（NF回路設計ブロック社製 LI-574A）を用いた。ロックインアンプに信号  $V_{\text{beat}}$  と局部発振  $V_{\text{LO}} = A \cos(p\Delta\omega_r t + \Delta\varphi)$  を加えると、出力はこの2つの入力の掛け算になり

$$\begin{aligned} V_{\text{beat}}(t) \times V_{\text{LO}}(t) &\propto (|C_p|^2 + |C_{-p}|^2) \cos(\Delta\varphi_0) \cos(p\Delta\omega_r t + p\Delta\varphi_r) \\ &\quad \times A \cos(p\Delta\omega_r t + \Delta\varphi) \\ &= \frac{A(|C_p|^2 + |C_{-p}|^2)}{2} \cos(\Delta\varphi_0) \cos(p\Delta\varphi_r - \Delta\varphi) \quad (4.14) \end{aligned}$$

になる。ただし、 $\Delta\varphi$  は局部発振器と光周波数コムとの繰り返し周波数差との位相揺らぎを示している。ここで、光路長の位相差  $\Delta\varphi_0$  を測定するためには、 $\Delta\varphi$  を一定値にしなければならない\*。そこで、我々は局部発振器に電気光学変調器型光周波数コムに用いている2台の発振器のビート信号を使用した。実際の実験では、光周波数コムの光強度にミキサーで発生した  $\Delta f_r$  の信号が漏れていたもので、これを取り除くためにロックインアンプ内部で発生させた  $2\Delta f_r$  の周波数を用いて検波した。

光路長制御は、先ほど説明した誤差信号を図 4.31 に示したフィードバック回路を通して行った。実際の光路長の制御は PZT を用いたが、PZT 単体では数  $\mu\text{m}$  程度しか変化できず同期してもすぐに同期が外れてしまった。そこで、図 4.30 に示したような

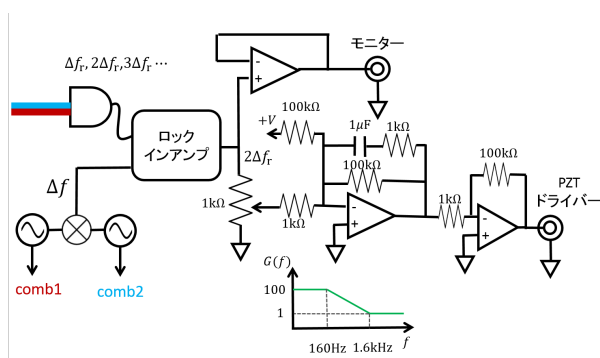


図 4.31 フィードバック回路

\* $p\Delta\varphi_r$  は繰り返し周波数差の周波数で決まる光路長の変化なのでほとんど無視できる。そのため、発振器とコムとの位相差  $\Delta\varphi$  が重要になる。

光学系にし変化可能な光路長を増やした。その結果、同期できる時間を数分程度まで増やす事が出来た。

### 4.4.3 光路長安定化の実験結果

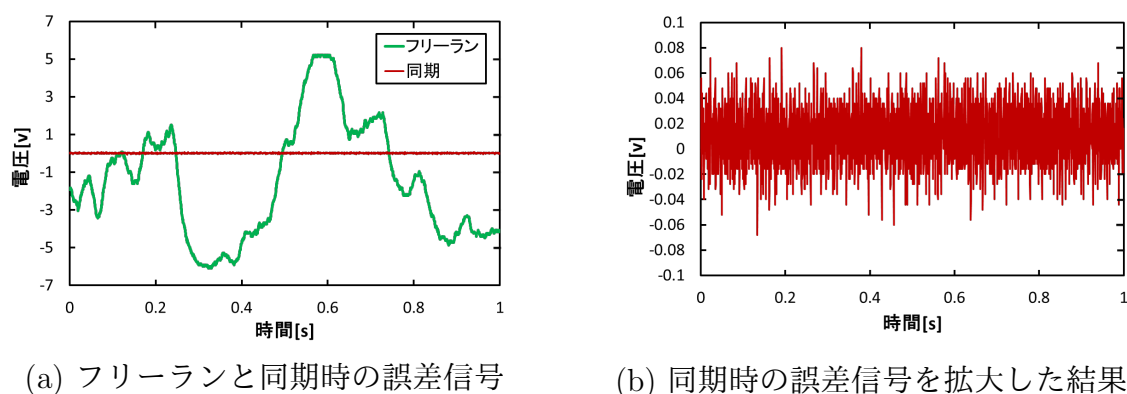


図 4.32 誤差信号

ここでは光路長安定化によるビート信号の時間的振幅揺らぎの実験結果について述べる。繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  は 10 kHz に設定した。図 4.31 に示したフィードバック回路を用いて光路長の制御を行った結果、ロックインアンプから図 4.32 のような誤差信号が得られた。その結果、実際の誤差信号でも図 4.29 で説明したような余弦波の信号が得られた（図 4.32 の (a) の緑線）。また、光路長を制御する事で誤差信号を小さくする事が出来た（図 4.32 の (a) の赤線）。この結果から同期時の光路長の揺らぎを見積もると

$$\begin{aligned}\pi : \Delta\varphi_0 &= 11 : 0.15 \\ \Delta\varphi_0 &= \frac{0.15}{11}\pi \\ &\simeq 0.043 \text{ rad}\end{aligned}$$

になる。

次に、図 4.32 の (b) のような誤差信号が得られた時の各ビート信号を測定した。この時の測定は FFT アナライザー（東洋テクニカ社製 DT9847）を用いて行った。その結果、同期が保たれている間では誤差信号を得ている周波数だけでなく、全てのモードの振幅で揺らぎを抑える事が出来た。しかし、各ビート信号の振幅は光路長差  $\Delta\varphi_0$  を  $\pi/2$  になるように制御したにも関わらず、全てのビート信号の振幅でゼロになる信



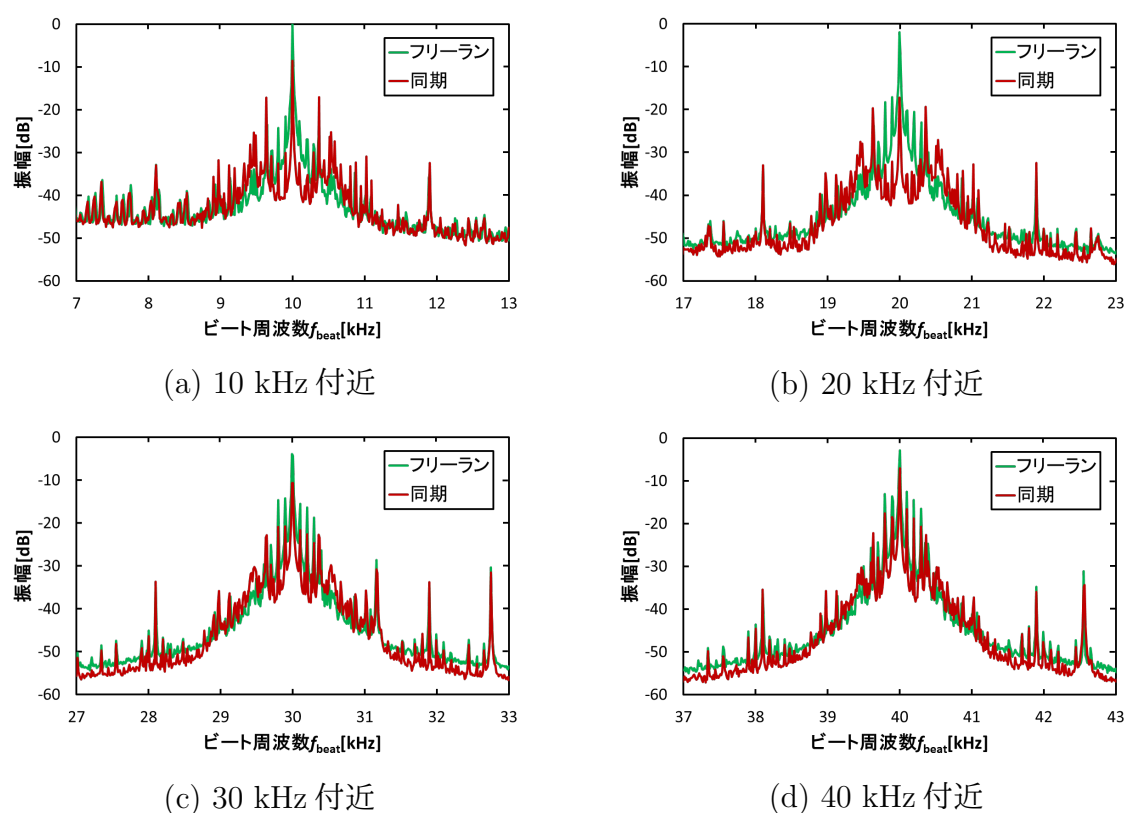


図 4.33 光路長安定化前後のビート信号スペクトル

号(4.4.1節)は得られず有限の値を持った。図4.33にその様子を示した。ここで、4.2節で説明したようにフリーランでのビート信号の振幅は、時間的に揺らいでいるので平均値を示した。また、同期時の信号も同様の時間平均で測定した。それぞれの同期時の結果について比較を行うと、誤差信号を得ている20 kHzで最もビート信号の振幅が減少し、モード次数が増加すると共にビート信号の振幅が増加していた。

この様子をよりわかりやすくするために、同期時の振幅の値( $\pm 5$  kHzの積分値)をフリーラン時の振幅の値で割ったものを図4.34の(a)に示した\*。ここでは、ほぼ同じ条件になるように設定してフリーランの時と同期の時の結果をそれぞれ4回取得した。そして、各同期時の振幅を4回のフリーラン時の平均で割った結果を示した。その結果、同じ条件でも次数による振幅の増加に変化が生じる事がわかった。次に、マスターレーザーの周波数を掃引して、次数3(ラジオ周波数:30 kHz)にP17の吸収線の信号が現れるように設定した時の結果を図4.34の(b)に示した。この結果から、吸収信号を含んでいるビート信号では、図4.26で説明した振幅の増加が観測された。また、図4.34の(a)と比較して次数による振幅の増加の仕方も大きく変化していた。

\* 電気光学変調器型光周波数コムは光強度は次数の増加と共に指数的に減少する。そのため、同期時にどれだけ振幅が減少したのかをより定量的に調べるために、元々持っている振幅で割って規格化した。



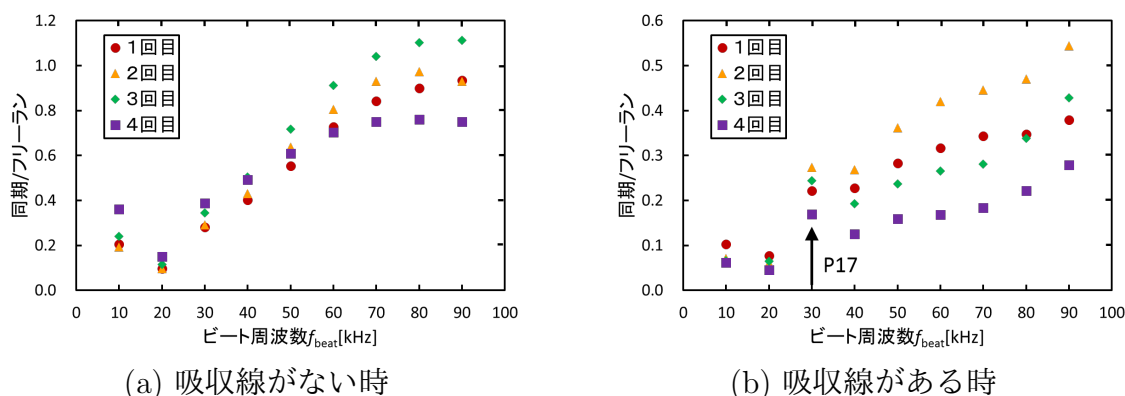


図 4.34 同期時/フリーラン時のビート信号スペクトル

#### 4.4.4 高次モードのビート信号振幅の増加の原因

4.4.3 節の結果より、全てのモードのビート信号の振幅揺らぎは光路長で制御できることがわかった。また、この時観測されるビート信号の振幅は、正負のサイドバンドの差になり、片方のサイドバンドに吸収があればビート信号の振幅が増加する事も観測できた。しかし、モード次数の増加と共にビート信号の振幅が増加する理由については、4.4.1 節の仮定の基では説明する事が出来ない。そこで、次のような仮定を新たに加え、この現象についての考察を行った。

4.4.1 節の仮定では、光周波数コムから出力される光の光路長変化のみを考えていた。そこで、本節では電気光学変調器型光周波数コムのファブリー・ペロー共振器の影響について考える。そのため、2.2.2 節で説明した電気光学変調器型光周波数コムの式 (2.43) に共振器の揺らぎを加える [43]。ここでは、ファブリー・ペロー共振器長を  $L$  とした時の往復時間を  $\tau_c = 2L/c = a(2\pi/\omega_0)$ 、( $a$  は整数) とし、変調角周波数を

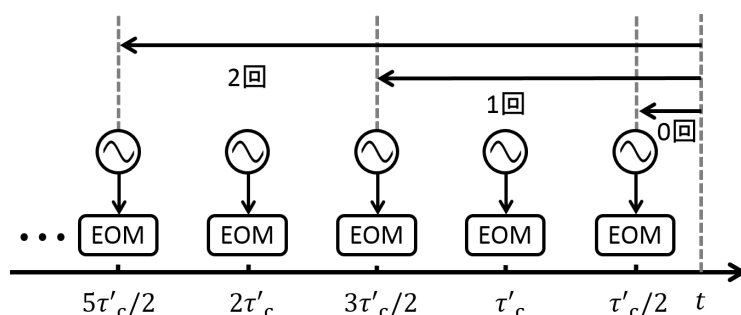


図 4.35 共振器内の EOM の時間遅延

$\omega_r = 2\pi/\tau_c$  とする。従って、共振器を  $q$  回往復した時に出力される電場  $E_{o,q}(t)$  は

$$E_{o,q}(t) = TR^q \exp \left[ j \left\{ \omega_0 \left( t - \left( q + \frac{1}{2} \right) \tau'_c \right) + \sum_{l=1}^{2q+1} M \sin \left( \omega_r \left( t - \frac{l}{2} \tau'_c \right) \right) \right\} \right] \quad (4.15)$$

となる。ただし、 $\tau'_c = \tau_c + \Delta\tau_c$  は共振器の揺らいだ時の往復時間である。 $\Delta\tau_c$  は共振器の共鳴からのずれである。図 4.35 は、共振器内の往復を時間軸上で考えた場合である。従って、それぞれの共振器内の時間遅延を考慮した EOM の効果は  $\exp[j(M \sin(\omega_r t))]$  にそれぞれの時間遅延  $l\tau'_c/2$ 、( $l$  は整数) を加えたものを掛けた結果 (式 (4.15) の  $\sum$  の項) になる。

ここで、式 (4.15) の  $\sum$  の項は次式の数学公式 [44] を

$$\sum_{r=1}^n \sin(x + (r-1)\theta) = \frac{\sin\left(x + \frac{(n-1)\theta}{2}\right) \sin\left(\frac{n\theta}{2}\right)}{\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \quad (4.16)$$

を用いると

$$\begin{aligned} \sum_{l=1}^{2q+1} M \sin \left( \omega_r \left( t - \frac{l}{2} \tau'_c \right) \right) &= M \frac{\sin \left( \omega_r t - \omega_r \frac{\tau'_c}{2} - q\omega_r \frac{\tau'_c}{2} \right) \sin \left( -\frac{(2q+1)\omega_r \tau'_c}{4} \right)}{\sin \left( -\frac{\omega_r \tau'_c}{4} \right)} \\ &\simeq M(2q+1) \sin \left( \omega_r t - \frac{(1+q)\omega_r \tau'_c}{2} \right) \end{aligned}$$

と展開できる。

出力光  $E_o(t)$  は式 (4.15) を足し合わせた結果なので、式 (2.42) を用いて

$$\begin{aligned} E_o(t) &= \sum_{q=0}^{\infty} E_{o,q}(t) \\ &= T \sum_{n=-\infty}^{\infty} \sum_{q=0}^{\infty} R^q J_n(M(2q+1)) \exp \left[ j \left\{ (\omega_0 + n\omega_r)t - \left( \frac{1+2q}{2} \omega_0 + n \frac{1+q}{2} \omega_r \right) \tau'_c \right\} \right] \quad (4.17) \end{aligned}$$

と表される。ここで、ベッセル関数  $|J_n(x)|$  の最大値は  $x \sim n$  であるという関係を用いて、 $n$  次のサイドバンド  $E^{(n)}(t)$  について考えると

$$\begin{aligned} E^{(n)}(t) &\simeq TR^{(|n|-M)/2M} J_n(n) \exp \left[ j \left\{ (\omega_0 + n\omega_r)t - \left( |n|\omega_0 + n \frac{M+|n|}{2} \omega_r \right) \frac{\tau'_c}{2M} \right\} \right] \quad (4.18) \end{aligned}$$

このように近似できる。従って、電気光学変調器型光周波数コムから出射される各モードの位相は

$$\begin{aligned}\Delta\varphi &\simeq \frac{|n|\omega_0}{2M}\tau'_c \\ &= \varphi_0\end{aligned}\quad (4.19)$$

になる。ここで、 $\omega_0 \gg \omega_r$  なので  $\omega_r$  の項は無視した。

式 (4.19) からわかるように、光周波数コムの共振器がオフセット周波数の共鳴からずれると、各モードに次数依存性の位相項が含まれる\*。そのため、 $n$  と  $-n$  のビート信号の位相関係を  $\pi$  になるようにしても、 $n+1$  と  $-(n+1)$  の位相関係は  $\pi$  ではなくなる。この影響で、図 4.34 のようなモード次数によるビート信号の振幅の変化が生じた。また、図 4.34 の (a) と (b) で振幅の増加の仕方が大きく変化したのは、マスターレーザを掃引した結果、共振器の共鳴点からずれたためである。

次に、この仮定で図 4.34 を説明できるのか確かめを行った。そのために、式 (4.17) を式 (4.8) に代入して各モードの振幅の二乗を求め、同期（次数 2 の位相関係が  $\pi$  になるような係数をすべてのモードに掛けたもの）とフリーラン（全てのモードの位相関係が同相になるような係数を掛けたもの、つまりビート信号の最大振幅）の比を MATLAB で計算した。ただし、一方のコムの共振器長は完全にマスターレーザの周波数に共鳴していると仮定した。その結果、図 4.36 のような計算結果が得られた。ここで、マスターレーザの周波数  $f_0$  を 195.2282 THz、繰り返し周波数  $f_r$  を 6.25 GHz、繰り返し周波数差  $\Delta f_r$  を 10 kHz、変調指数  $M$  を 0.4 rad、吸収率を 25 %（モード次数 3 のみ）に設定した。この結果、図 4.34 の現象を今回の仮定で説明する事ができた。また、式 (4.19) で表したように共振器の FSR とマスターレーザの周波数のずれ  $f_0\tau'_c$  の大きさや、変調指数  $M$  の違いによって、振幅の増加の仕方が変化するのか計算した（図

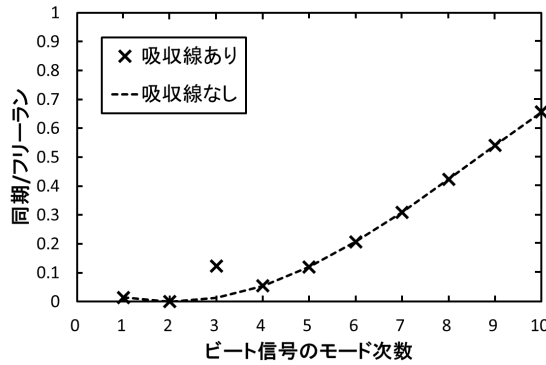


図 4.36 吸収の有無によるビート信号の振幅の変化の理論計算

\* $\tau'_c$  が共振器に共鳴な時、 $\Delta\tau'_c = 0$  なので  $\tau'_c = a(2\pi/\omega_0) = 2\pi/\omega_r$  となる。従って、式 (4.15) の  $\tau'_c$  の項は  $\pi$  の整数倍になる。

4.37)。この結果、共鳴からのずれが小さいまたは変調指数が大きい程、同期時のビート信号の振幅のモード次数による増加が小さい事がわかった。

以上の結果から、モード次数による同期時のビート信号振幅の変化は、電気光学変調器型光周波数コムがモードロックレーザーとは異なり、ピークの所ですべてのモードの位相がそろっていないために生じた事がわかった。ただし、この効果は2台の共振器のずれが等しくないために起こるので、もし2台の共振器のずれが等しくなるように制御することができればモード次数による増加は起きないと予想される。

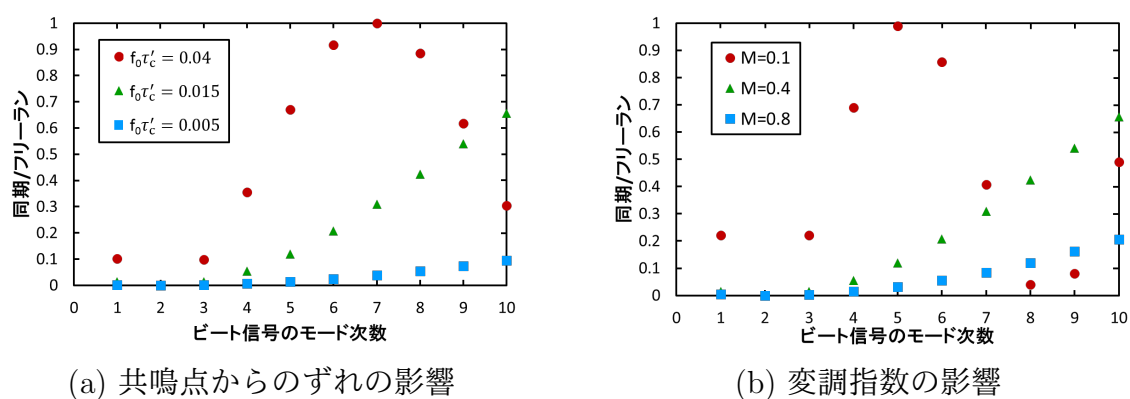


図 4.37 共鳴点や変調指数の変化による振幅の変化の理論計算

## 第5章 まとめと今後の予定

本研究では、従来のモードロックレーザーの代わりに電気光学変調器型光周波数コムを用いてデュアルコム分光する方法を提案し、その実証を行った。この方法を用いると、従来の方法で感度の良い測定を行うために必要不可欠であった高精度な位相同期が不要となり、より簡便で実用的なコム分光計を実現することができる。

我々は、波長  $1.54\ \mu\text{m}$  帯のマスターレーザー (CW レーザー) を用いて電気光学変調器型光周波数コムを発生し、デュアルコム分光を行った。その結果、電気光学変調器型光周波数コムの全てのスペクトル (500 GHz) をビート信号で測定することができた。しかし、この時測定されたビート信号は時間的に振幅が揺らいでいた。この原因は正負のサイドバンドのビート信号同士の干渉であった。そしてこの問題は、遅延ファイバーを用いる方法と光バンドパスフィルタを用いる方法で解決することができた。

次に、光バンドパスフィルタを用いる方法でアセチレン分子の吸収スペクトル測定 (中心波長: 1535 nm、測定帯域: 200 GHz) を行った。その結果、アセチレン分子の3本の吸収線 ( $^{12}\text{C}_2\text{H}_2$  の  $\nu_1 + \nu_3$  帯の P16, P17, P18 の回転線) を測定することができた。また、より感度の良い測定を行うために積算も行った。その結果、積算前よりも感度の良い測定 ( $\Delta I/I = 5 \times 10^{-3}$ ) を行うことができた。

最後に、光路長安定化によるビート信号の振幅揺らぎの低減を行った。その結果、全てのモードでビート信号の時間的振幅揺らぎを抑える事ができた。しかし、この方法では同期時のビート信号振幅の大きさに次数依存性が現れた。これは、2台の電気光学変調器型光周波数コムの共振器長の長さの違いが原因であった。

今後の予定としては、光周波数コムのパワーの増幅や積算時間の増加などを行い、さらなる感度の向上を目指す予定である。

## 参考文献

- [1] T. Kobayashi, Y. Cho, and Y. Matsuo. Highrepetitionrate optical pulse generator using a FabryPerot electro-optic modulator. *Appl. Phys. Lett.* **21**, 341 (1972).
- [2] M. Kourogi, K. Nakagawa, and M. Ohtsu. Wide-span optical frequency comb generator for accurate optical frequency difference measurement. *IEEE J. Quantum Electron.* **29**, 2693 (1993).
- [3] K. Imai, M. Kourogi, and M. Ohtsu. 30-THz span optica frequency comb generation by self-phase modulation in an optical fiber. *IEEE J. Quantum Electron.* **34**, 54 (1998).
- [4] J. Reichert, R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hänsch. Measuring the frequency of light with mode-locked lasers. *Opt. Commun.* **172**, 59 (1999).
- [5] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall, and S. T. Cundiff. Carrier-envelope phese control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science* **288**, 635 (2000).
- [6] S. A. Diddams, D. J. Jones, J. Y. Steven, T. Cundiff, J. L. Hall, J. K. Ranka, R. S. Windeler, R. Holzwarth, T. Udem, and T. W. Hänsch. Direct link between microwave and opticl frequencies with a 300 THz femtosecond laser comb. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5102 (2000).
- [7] P. Dal'Haye, A. Schliesser, O. Arcizet, T. Wilken, R. Holzwarth and T. J. Kippenberg. Optical frequency comb generation from a monolithic microresonator. *Nature* **450**, 1214 (2007).
- [8] 吉井, 洪, 桂川. 絶対周波数精度を転写した THz 周波数間隔のラマンコム発生. レーザー研究 **39**, 836 (2011).
- [9] 梶谷誠監修. ユニーク & エキサイティング サイエンス. 近代科学社, (2013).

- [10] 洪鋒雷 「光周波数コムが拓く新時代」解説小特集号によせて. レーザー研究 **39**, 818 (2011).
  - [11] M. Shirasaki. Large angular dispersion by a virtually imaged phased array and its application to a wavelength demultiplexer. *Opt. Lett.* **21**, 366 (1996).
  - [12] A. Vega, A. M. Weiner, and C. Lin. Generalized grating equation for virtually-imaged phased-array spectral dispersers. *Appl. Opt.* **42**, 4152 (2003).
  - [13] S. Xiao, A. M. Weiner, and C. Lin. A dispersion law for virtually imaged phased-array spectral dispersers based on paraxial wave theory. *IEEE J. Quantum Electron.* **40**, 420 (2004).
  - [14] S. A. Diddams, L. Hollberg, and V. Mbele. Molecular fingerprinting with the resolved modes of a femtosecond laser frequency comb. *Nature* **445**, 627 (2007).
  - [15] M. J. Thorpe, D. B. Clausen, M. S. Kirchner, and J. Ye. Cavity-enhanced optical frequency comb spectroscopy: application to human breath analysis. *Opt. Express* **16**, 2387 (2008).
  - [16] S. Schiller. Spectrometry with frequency combs. *Opt. Lett.* **27**, 1542 (2002).
  - [17] F. Keilmann, C. Gohle, and R. Holzwarth. Time-domain mid-infrared frequency-comb spectrometer. *Opt. Lett.* **29**, 1542 (2004).
  - [18] I. Coddington, W. C. Swann, and N. R. Newbury. Coherent multiheterodyne spectroscopy using stabilized optical frequency combs. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 013902 (2008).
  - [19] A. M. Zolot, F. R. Giorgetta, E. Baumann, J. W. Nicholson, W. C. Swann, I. Coddington, and N. R. Newbury. Direct-comb molecular spectroscopy with accurate resolved comb teeth over 43 THz. *Opt. Lett.* **37**, 638 (2012).
  - [20] T. Ideguchi, B. Bernhardt, G. Guelachvili, T. W. Hänsch, and N. Picque. Raman-induced Kerr-effect dual-comb spectroscopy. *Opt. Lett.* **37**, 4498 (2012).
  - [21] I. Coddington, W. C. Swann, L. Nenadovic, and N. R. Newbury. Rapid and precise absolute distance measurements at long range. *Nature Photon.* **3**, 351 (2009).
-

- 
- [22] J. Lee, S. Han, K. Lee, E. Bae, S. Kim, S. Lee, S. Kim, and Y. Kim. Absolute distance measurement by dual-comb interferometry with adjustable synthetic wavelength. *Meas. Sci. Technol.* **24**, 045201 (2013).
- [23] T. Ideguchi, S. Holzner, B. Bernhardt, G. Guelachvili, N. Picque, and T. W. Hänsch. Coherent Raman spectro-imaging with laser frequency combs. *Nature* **502**, 355 (2013).
- [24] 久世, 小澤, 小林. デュアルコム分光～FT-IR にかわる高速広帯域精密分光～. 日本物理学会 **69**, 29 (2014).
- [25] T. Ideguchi, A. Poisson, G. Guelachvili, T. W. Hänsch, and N. Picque. Adaptive dual-comb spectroscopy in the green region. *Opt. Lett.* **37**, 4847 (2012).
- [26] A. Yariv and P. Yeh. *Optical Electronics in Modern Communications*. Oxford University Press, 2006; 多田, 神谷訳. 原書 6 版 ヤリイヴ-イエー 光エレクトロニクス 基礎編. 丸善. (2010).
- [27] 佐貝, 杉村. 光エレクトロニクス. 朝倉書店, (1993).
- [28] 霜田光一. レーザー物理入門. 岩倉書店, (2010).
- [29] 的場修編. 光エレクトロニクス. オーム社, (2013).
- [30] 今井一宏. 自己位相変調器による高効率光周波数コム発生に関する研究. 博士論文, 東京工業大学, (1999).
- [31] 黒田和男. 物理光学. 朝倉書店, (2011).
- [32] 服部利明. 非線形光学入. 裳華房, (2009).
- [33] 江間一弘. 光物理学の基礎. 朝倉書店, (2010).
- [34] 吉田, 松浦, 富山, 小島. 現代工学のためのフーリエ変換の計算法. 現代工学社, (1994).
- [35] 伊東一良. 分光画像入門. 朝倉書店, (2013).
- [36] 平石次郎編. フーリエ変換赤外分光法. 学会研究センター, (1991).
- [37] A. Schliesser, N. Picque, and T. W. Hänsch. Mid-infrared frequency combs. *Nature Photon.* **6**, 440 (2012).
-



- [38] I. Coddington, W. C. Swann, and N. R. Newbury. Coherent dual-comb spectroscopy at high signal-to-noise ratio. *Phys. Rev. A* **82**, 043817 (2010).
  - [39] P. Giaccari, J. D. Deschênes, P. Saucier, J. Genest, and P. Tremblay. Active Fourier-transform spectroscopy combining the direct RF beating of two fiber-based mode-locked lasers with a novel referencing method. *Opt. Express* **16**, 4347 (2008).
  - [40] K. Nakagawa, M. de Labachellerie, Y. Awaji, and M. Kourogi. Accurate optical frequency atlas of the 1.5  $\mu\text{m}$  bands of acetylene. *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 2708 (1996).
  - [41] Standard Reference Material, *National Institute of Standards and Technology*, 2517a, (2005).
  - [42] I. Coddington, W. C. Swann, and N. R. Newbury. Time-domain spectroscopy of molecular free-induction decay in the infrared. *Opt. Lett.* **35**, 1395 (2010).
  - [43] M. Musha, A. Ueda, M. Horikoshi, K. Nakagawa, M. Ishiguro, K. Ueda, and H. Ito. A highly stable mm-wave synthesizer realized by mixing two lasers locked to an optical frequency comb generator. *Opt. Commun.* **240**, 201 (2004).
  - [44] 森口, 宇田川, 一松. 岩波 数学公式 2 級数・フーリエ解析. 岩波書店, (1957).
-

## 謝辞

私は学部と修士過程の3年間、中川研究室に在籍させて頂きました。この3年間で、私は高専の研究ではできなかった、実験装置の作成や本当の研究という物を経験させて頂きました。中川先生には、熱心な指導だけでなく、潤沢な研究環境も用意して頂き心より感謝しています。

武者先生には実験装置を貸して頂いただけでなく、研究についても様々なアドバイスを頂き、研究を進めて行く助けになりました、深く感謝致します。

向山先生と森永先生には、合同ゼミの際に的確なアドバイスや質問等をして頂き、感謝しています。

武者研の北村さんには、共同研究者として様々なアドバイスを頂きました。中川研の先輩方には、実験装置の使い方だけでなく様々な質問に答えて頂き本当にお世話になりました。先輩方のお陰で、充実した生活を送れたと思います。同期の堀君には、3年間お世話になりました。堀君との3年間は本当に楽しく、私の人生で良い経験になったと思います。後輩の田村君には、研究の姿勢等で色々と刺激を受けさせて頂きました。これからも研究を頑張ってください。また、中川研の4年生の皆のお陰で楽しく生活する事が出来ました。レーザー研の皆様にも、様々な面でお世話になりました。

最後に、今まで何不自由なく生活の世話して頂いた両親に深く感謝致します。

